



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
Author(s)	岡, ゆきみ
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第14431号
Issue Date	2021-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k14431
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/91550
Type	doctoral thesis
File Information	Yukimi_Oka.pdf



学位論文

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

北海道大学大学院工学院材料科学専攻

岡 ゆきみ

目次

第1章 序論.....	1
1.1 凝固シミュレーション	1
1.2 凝固シミュレーションにおけるパラメータ推定の問題.....	2
1.2.1 マクロスケールの凝固伝熱シミュレーション	2
1.2.2 メゾスケールのフェーズフィールド・シミュレーション.....	3
1.3 データ同化.....	6
1.4 本研究の目的及び本論文の構成.....	9
参考文献.....	10
第2章 データ同化手法および凝固シミュレーションモデル.....	12
2.1 緒言	12
2.2 データ同化の手法	12
2.2.1 状態空間モデル	13
2.2.2 フィルタリング	15
2.2.3 粒子フィルタのアルゴリズム.....	15
2.2.4 アンサンブルカルマンフィルタのアルゴリズム.....	17
2.3 フェーズフィールド法	18
2.4 凝固伝熱解析	21
2.5 結言	22
参考文献.....	22
第3章 固液界面物性値の推定に対するデータ同化の有効性の検証.....	24
3.1 緒言	24
3.2 計算方法	24

3.2.1	観測データの計算方法	24
3.2.2	粒子フィルタの計算条件	26
3.3	結果	27
3.3.1	粒子フィルタによる固液界面物性値の推定	27
3.3.2	システムサイズおよび格子点間隔が推定精度に与える影響	32
3.4	結言	33
	参考文献	34
第4章	データ同化に基づいた固液界面物性値の推定	61
4.1	緒言	61
4.2	計算方法	61
4.3	固液界面物性値の推定結果	63
4.4	固液界面物性値の推定結果の精度検証	65
4.5	結言	67
	参考文献	68
第5章	凝固伝熱解析におけるパラメータ推定	81
5.1	緒言	81
5.2	計算方法	82
5.2.1	金型鋳造のパラメータ推定	82
5.2.2	連続鋳造のパラメータ推定	83
5.3	金型鋳造のパラメータ推定の結果	84
5.3.1	鋳型-溶湯間の熱伝達係数の推定	84
5.3.2	時間変化する鋳型-溶湯間熱伝達係数の推定	85
5.3.3	溶湯の熱伝導率の推定	86
5.3.4	溶湯の熱伝導率と鋳型-溶湯間熱伝達係数の同時推定	86
5.4	連続鋳造のパラメータ推定の結果	87

5.4.1	粒子フィルタの鑄型－溶湯間熱伝達係数推定に対する有効性の検証.....	87
5.4.2	連続鑄造の鑄型－溶湯間熱伝達係数の推定.....	88
5.5	結言	89
	参考文献.....	90
第6章	総括.....	114

第1章 序論

1.1 凝固シミュレーション

鋳造や溶接といった凝固を伴う金属の加工法は、多くの金属製品の製造工程で用いられる重要なプロセスである。高品質な金属製品を得るためには、金属の凝固過程を正しく理解し、制御することが重要である。

金属製品の製造においては、鋳造、圧延、熱処理、塑性加工といった様々な加工プロセスが用いられるが、鋳造は多くの製品の製造工程に存在する工程である。鋳造では溶融した金属を鋳型に流し込んで凝固させ、所定の形に成形する。このとき凝固がどのように進行するかによって鋳造製品の品質が決定する。また、金属同士の接合に用いられる溶接においては、熱影響部に加えて溶融金属部が接合の性質を決めることになるため、溶融に続く凝固現象の理解が必要である。さらには、近年注目を集めている積層造形技術においてもビードの急速凝固を理解し制御することが求められている。

金属材料の凝固過程を実験的手法によって観察することが困難であったことから、計算機シミュレーションが凝固過程の予測のための有効な手段となってきた。例えば、鋳造メーカー各社で、Computer Aided Engineering(CAE)ツールを使った伝熱・流動シミュレーションは日常的に行われている。ここで、金属の凝固プロセスは、流動、熱拡散、溶質拡散、さらには固相の変形が伴うマルチフィジックスの現象である。そして、これらそれぞれの物理法則が主として関与する現象の時空スケールは多階層に及ぶことから、凝固の全てを詳細に取り入れたシミュレーションモデルは未だに開発されておらず、解析対象の時空スケールや現象の支配因子に応じたシミュレーションモデルがいくつも提案されてきた[1]。

最も基本的な凝固シミュレーションのひとつは凝固伝熱解析である[2]。一般に鋳物と鋳型を含めたマクロスケールの系を対象に、溶融した金属がどの場所から凝固を開始し、各位置がどのような順番で凝固していくのかの予測を目的とした解析である。引け巣、湯だまり、湯境などの鋳造欠陥の発生位置を予測するために用いられている[3]。また、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、このスケールにおいても鋳片品質に影響を与える多くの因子がある [4]。鋳造材の物性・品質はこれらの組織因子によって直接決定されることになる。また、圧延や熱処理といった鋳造の後続工程におけるプロセスパラメータはこれらの因子に応じて調整しなくてはならない。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発展しているが、現在ではフェーズフィールド法が最も高精度にそして最も効率的に組織形成を予測する手段として発展しており、様々な凝固組織の解析に応用されている[5]。

上述の通り、種々の凝固シミュレーション法が開発され、材料開発の現場で有効活用され

てきた。そして、新たなプロセスに応用されつつある。実際、材料開発時間の大幅な短縮のために、これらのシミュレーションの精度を上げ、有効活用することが強く求められている[6]。しかし、こういったシミュレーション技術に共通する致命的な問題がある。それは入力パラメータの欠如である。新しい鋳造プロセスを検討するとき、または開発途中の材料の組織を予測するときなど、未知のプロセス・現象を解析するときには、こういったシミュレーションに入力するパラメータが文献値として報告されていないことが一般的である。また、シミュレーションに用いる入力パラメータを高精度に測定することが困難な場合や実質的に不可能な場合すらある。入力パラメータを如何に効率的に、そして高精度に求めるのかという課題は、凝固工学および計算材料科学の分野において現在重要な課題となっている。これはいわゆる逆解析の問題であり様々な手段が考案されてきたが、新しいプロセスにすぐに適用できるような拡張性や、既存の設備ですぐに高精度な測定を可能にするような簡便さを兼備する手段は開発されていない。また、時間依存パラメータの測定や非平衡条件における物性値の取得など、既存の手法では実質的に測定が不可能なものもある。本研究はデータ科学の手法であるデータ同化を応用し、この問題の解決を試みたものである。今までにない拡張性と簡便さを兼ね備えた優れたパラメータ推定手段の開発を目指し種々の解析を行った。本研究の背景と目的の詳細を以下に記す。

1.2 凝固シミュレーションにおけるパラメータ推定の問題

計算機シミュレーションによる現象の再現性を左右する重要な因子の一つは、入力パラメータの精度である。以下、マクロ及びメソスケールの凝固シミュレーションにおいてどのようなパラメータが重要となるのか説明する。

1.2.1 マクロスケールの凝固伝熱シミュレーション

凝固伝熱解析ではシステムの温度変化を計算することで、熔融金属の凝固過程を予測する。鋳造中の鋳物や鋳型の温度変化を予測する場合には、以下に示す式を解く。

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k \nabla^2 T - L \frac{\partial f_s}{\partial t} \quad (1.1)$$

$$q = h(T_{alloy} - T_{mold}) \quad (1.2)$$

(1.1)式は溶湯内の熱伝導方程式であり、 ρ は密度、 C_p は比熱、 k は熱伝導率、 L は比熱、 f_s は固相率である。鋳型内の熱伝導を計算する場合は右辺第2項の潜熱項がない式を解く。(1.2)式は鋳型-溶湯間の熱伝達式であり、 q は鋳型-溶湯界面を通過する熱流束、 h は鋳型-溶湯間の熱伝達係数、 T_{alloy} は溶湯側の界面温度、 T_{mold} は鋳型側の界面温度である。この式によって、凝固に伴う潜熱を考慮しながらシステムの温度変化を計算することができる。鋳造中の溶湯の凝固を予測する場合には、伝熱解析に加えて溶湯の流動や溶質拡散方程式を解く必要があるが、計算コストの観点から、伝熱解析のみによって凝固を予測する 경우가多々ある。その場合、熱伝達係数や溶湯の熱伝導率には流動や溶質拡散の影響を含んだ見かけの

値を用いる必要がある。

凝固伝熱解析に用いる式のうち、熱伝達係数の精度が問題となる場合が多々ある。凝固伝熱解析のみによって溶湯の凝固過程を予測する場合、熱伝達係数に見かけの値を用いる必要があるが、見かけの熱伝達係数を求める際には、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[7]。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。しかし試行錯誤には非常に大きな手間がかかる。その上、試行錯誤の方法では常に精度よく熱伝達係数を決定できるとは限らず、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。例えば、凝固にともなって溶湯と鋳型の界面の状態が変化し、エアギャップが発生するため、熱伝達係数は時間変化する。熱伝達係数を試行錯誤によって決定する際には、事前にその時間変化を表す近似式を仮定する。近似式としては熱伝達係数の値が時間に反比例するような関数が用いられることが多い[7,8]。しかし、近似式が常に正しいとは限らないという懸念もある。

熱伝達係数の試行錯誤によらない決定方法としては、温度などの測定が容易な出力から逆解析によって決定する方法が複数提案されている。例えば、ベイズ推定に基づいて定常状態の熱伝導率と熱伝達係数を同時に推定する方法[9]、遺伝的アルゴリズムに基づいてステンレス鋼の砂型鋳造における熱伝達係数を推定する方法[10]、感度解析と収束計算を用いて単結晶ブレードを鋳造する際の熱伝達係数を推定する方法[7]などである。これらの方法は、それぞれの適用範囲においては非常に有用な方法であることが示されている。しかし、想定している系が定常状態のみであったり、熱伝達係数が時間によって変化しないことを前提としたものであったり、熱伝達係数がある近似式に従って時間変化するると仮定する必要があると、その適用範囲は狭い範囲に限られている。特に、熱伝達係数の時間変化を事前の仮定なく自動的に推定する方法は開発されていない。したがって、更に様々なプロセスに広く応用できるような汎用性や拡張性に優れた方法が求められている。また、凝固伝熱解析のみによって凝固シミュレーションを行う場合、溶湯の熱伝導率も見かけの値とする必要がある。したがって、熱伝達係数と溶湯の熱伝導率を同時に推定する方法が開発されることが望ましい。

1.2.2 メゾスケールのフェーズフィールド・シミュレーション

dendrite の成長を予測するためには、凝固に伴って変化する固液界面の位置を解析する必要がある。しかし、 dendrite の形状は非常に複雑であるため、固液界面の移動を直接追跡することは困難である。そこで、界面を直接追跡する必要のない方法として、フェーズフィールド法が dendrite 成長の解析に非常に有効であり、広く用いられている [11,12]。

フェーズフィールド法ではフェーズフィールド変数と呼ばれる秩序変数を導入する。固相や液相といった異なる相にそれぞれ異なる値の秩序変数を定義することで相を区別する。そしてフェーズフィールド法では、異なる相同士の間界面の幅が 0 ではなく、有限の幅があるとしている。界面の幅が 0 である場合、その界面は **sharp interface** と呼ばれるのに対して、有限の幅がある場合は **diffuse interface** と呼ばれる。**diffuse interface** では界面の中で秩序変数が滑らかに（連続的に）変化する。フェーズフィールド法では秩序変数のプロファイルによって界面の位置を表現し、秩序変数の時間発展方程式を解くことで界面の移動を解析する。界面の移動を逐一追従する必要がないため、複雑なデンドライトの発展を比較的簡便に予測することができる。

フェーズフィールド法では、システムの自由エネルギーが時間とともに減少するという原理に基づいて、秩序変数などの状態変数の発展を計算する。秩序変数の時間発展方程式の基本的な形を以下に示す[13]。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla^2 \phi + \phi(1 - \phi) \left(\phi - \frac{1}{2} + \beta \right) \quad (1.3)$$

フェーズフィールド法では、式(1.3)と熱伝導方程式や溶質拡散方程式を連成して解くことで金属の凝固をシミュレートする。ここで ϕ は秩序変数である。第1項は拡散項、第2項は反応項である。第1項と第2項の寄与のバランスによって、界面が静止している状態および移動している状態が再現される。また、 β の大きさが変わると相同士の間界面が移動する方向や速度が変化する。ここで、デンドライトの発展には界面の曲率が極めて重要な役割を果たす。フェーズフィールド方程式においては第1項に界面の曲率の影響が含まれているため、フェーズフィールド方程式を解くことで自然に界面の曲率の影響を考慮することができる。フェーズフィールド法は、ギブストムソン則、溶質濃度分配とエネルギー変化に関する保存則、バルクの溶質・熱拡散の3つの法則を再現しながら、界面の移動を簡便に解析できる強力な手法である。

フェーズフィールド法によって金属の凝固におけるデンドライト成長を予測する場合、潜熱や比熱といったバルクの熱力学量、熱拡散率や溶質拡散係数といった輸送係数、固液界面エネルギーやカイネティック係数といった固液界面物性値が入力パラメータとして必要となる。熱力学量や輸送係数は固液界面物性値に比較すれば入手が容易であるが、固液界面物性値は特に入手が困難な場合が多々ある。液相中に固相が存在している場合、液相に接する固相の結晶面によって固液界面物性値の値が異なる。例えば立方晶系における固液界面エネルギーは、一般的には(100)面が最も大きく、(110)、(111)面の順に小さくなることが知られている[14,15]。デンドライトは固液界面エネルギーが大きい面の面積を小さくするように成長するため、立方晶系では通常[100]方向が優先成長方向となる[16]。立方晶系の固液界面エネルギーは以下の式で表すことができる[17]。

$$\gamma(\mathbf{n}) = \gamma_0 a(\mathbf{n}) = \gamma_0 \left[1 + \varepsilon_1 \left(\sum_{i=1}^3 n_i^4 - \frac{3}{5} \right) + \varepsilon_2 \left(3 \sum_{i=1}^3 n_i^4 + 66n_1^2 n_2^2 n_3^2 - 17 \right) \right] \quad (1.4)$$

ここで、 \mathbf{n} は固液界面の法線ベクトルであり、 n_1 、 n_2 、 n_3 はその成分、 γ_0 は固液界面エネルギーの平均値、 ε_1 と ε_2 は異方性パラメータである。一方、界面カイネティック係数は界面の移動度に関連付けられるパラメータである。例えば純金属の過冷液相中で固相が成長するとき、凝固の駆動力は過冷度となる。平滑な固液界面の移動速度 V_n と過冷度 ΔT の関係は $V_n = \mu \Delta G$ で表すことができる。ここで、 μ は界面移動度、 ΔG は界面移動の駆動力であり、純金属の等温凝固では $\Delta G \approx L \Delta T / T_m$ である。 L は潜熱、 ΔT は融点と温度の差、 T_m は融点である。固液界面の移動速度と過冷度の関係式は、固液界面に曲率があり、界面物性に異方性がある場合、以下の式で表現される。

$$V_n = \mu(\mathbf{n})[\Delta G - (\gamma(\mathbf{n}) + \gamma'')r^{-1}] \quad (1.5)$$

\mathbf{n} は固液界面に垂直なベクトル、 r は曲率半径である。ここで、界面の移動度は以下の式で表すことができる。

$$\mu(\mathbf{n})^{-1} = \mu_0^{-1}b(\mathbf{n}) = \mu_0^{-1}(1 + 3\kappa) \left(1 - \frac{4\kappa}{1 + 3\kappa} \sum_{i=1}^3 n_i^4 \right) \quad (1.6)$$

μ_0 は移動度の平均値、 κ は異方性パラメータである。式(1.4)と(1.6)を(1.5)に代入し、 ΔT について整理すると、以下の式が得られる。

$$\frac{\Delta T}{L/C_p} = \frac{T_m C_p (\gamma(\mathbf{n}) + \gamma'')}{L^2} r^{-1} + \frac{T_m C_p}{L^2 \mu_0} (1 + 3\kappa) \left(1 - \frac{4\kappa}{1 + 3\kappa} \sum_{i=1}^3 n_i^4 \right) V_n \quad (1.7)$$

ここで、 $\Delta T / (L/C_p)$ は無次元過冷度である。式(1.7)の右辺第2項の係数 $(T_m C_p / L^2 \mu_0)$ が界面カイネティック係数の平均値 β_0 として定義される。つまり、界面カイネティック係数は次のような式で表すことができる[18]。

$$\beta(\mathbf{n}) = \frac{T_m C_p}{L^2 \mu_0} (1 + 3\kappa) \left(1 - \frac{4\kappa}{1 + 3\kappa} \sum_{i=1}^3 n_i^4 \right) = \beta_0 (1 + 3\kappa) \left(1 - \frac{4\kappa}{1 + 3\kappa} \sum_{i=1}^3 n_i^4 \right) \quad (1.8)$$

ここで β_0 は界面カイネティック係数の平均値、 κ は異方性パラメータである。デンドライトの成長を精度よく予測するためには γ_0 、 ε_1 、 ε_2 、 β_0 、 κ といった固液界面物性値を正しく決定する必要がある。

固液界面エネルギーの実験的な測定方法はこれまでにいくつか提案されている。1949年、Turnbullらは均一核生成頻度から固液界面エネルギーを逆算する方法を提案した[19,20]。しかしこの方法では、不均一核生成の影響を取り除くことが難しく、更に固液界面エネルギーの異方性を考慮することができない。1985年頃からはHuntらによって grain boundary groove methodが開発されてきた[21]。粒界の上に液滴を置いて平衡状態で保持し、粒界の角度を測定することで、Gibbs-Thomson式より固液界面エネルギーを算出することができる。この方法では多元系合金も純金属と同様に扱えるため、実験的な手法の中では最も多く採用される方法のひとつとなっている[14]。しかし、固液共存状態を一週間以上という長時間保持しなければならないという点で容易な測定ではない。特に、組織の解析に必要な過冷状態の値ではなく、平衡状態の値しか求まらないという問題もある。2001年にはLiuらが単結晶と液滴を平衡状態で共存させ、その形状から Al-Cu 二元系合金の固液界面エネルギーとその

異方性を測定した[21]。しかし、この方法では液滴を平衡状態にするまでに数百時間を要し、更に平衡状態の液滴の形状に与える加熱や冷却の影響の除去が難しい。したがって、この方法による実測値は非常に限られているのが現状である[14]。

以上のように、実験による固液界面エネルギーの測定は困難なことが多いため、近年では分子動力学法に基づく方法による算出が多く行われている。Baiらは、古典的核生成理論に基づいてギブストムソン方程式から固液界面エネルギーを算出する方法を開発した[22]。この方法では比較的簡便に固液界面エネルギーの平均値 γ_0 を算出することができるが、異方性は解析できない。一方、1986年にはBroughtonらがCleaving Methodと呼ばれる方法を提案し、レナード・ジョーンズポテンシャルを用いて固液界面エネルギーを算出した[23]。Cleaving Methodはその後、様々なポテンシャルを用いたシステムに応用されている[24]。Cleaving Methodでは固液共存系にcleaving potentialと呼ばれる固液界面を生成するためのポテンシャルを導入することで、単位面積あたりの固液界面エネルギーを直接計算することができる。このとき、液相と接する固相の結晶面を変えることで固液界面エネルギーの異方性を算出可能である。また、Hoytらは2001年にCapillary Fluctuation Methodと呼ばれる方法を提案した[25]。これは板状の固相と液相を平滑な固液界面を隔てて平衡状態で共存させ、生じた固液界面のゆらぎから固液界面エネルギーを算出する方法である。Capillary Fluctuation Methodにおいても、液相と接する結晶面を変えることで異方性を算出ことができ、異方性を算出するための効果的な方法であると言われている[26]。

上述の分子動力学法に基づいた γ_0 と ε_1 、 ε_2 の算出方法は、融点に保持された平衡状態の平滑界面における値を算出する方法である。したがって、高過冷度における値は算出することができない。しかし、 γ_0 は温度依存性を持つことが知られている[26]。したがって、Cleaving MethodやCapillary Fluctuation Methodで算出された γ_0 を用いる場合、フェーズフィールド法による凝固シミュレーションの適用範囲は、過冷度の影響が無視できるような低過冷度の凝固に制限される。また、Cleaving MethodやCapillary Fluctuation Methodは手順が煩雑な方法であり、合金を扱う場合には更に計算が煩雑になる[27-29]。したがって、フェーズフィールド法による合金の凝固シミュレーションは、溶質の影響が少ない低濃度合金に適用範囲が制限されることが多い。

界面カイネティック係数も固液界面エネルギーと同様に、実験による測定は困難であるため、分子動力学法に基づいた算出が行われている[30-33]。過冷された液相中で固相を一次的に自由成長させ、その界面の移動速度と過冷度から界面カイネティック係数を算出することができる。ただし、固液界面エネルギーと界面カイネティック係数を両方算出するためには、複数の煩雑な算出方法を用いなければならない。このため全ての固液界面物性値が得られている金属は極めて少数に限られている。

1.3 データ同化

前節で述べたように、マクロスケール及びメゾスケールの凝固シミュレーション分野に

においては、入力パラメータが欠如しているという致命的な問題がある。計算に必要な未知のパラメータを決定する問題とは、いわゆる逆問題であり、様々な分野で逆解析の手法が開発されてきた。逆解析とは、観測が容易な変数に関するシミュレーション結果と実測値の比較に基づいて、目的のパラメータを求める解析である。このように、出力値から入力値を推定することを逆解析と呼ぶ。逆解析によく用いられる方法としてデータ同化がある。

データ同化はデータ科学の方法であり、数値シミュレーションに観測データを取り入れることで、系の状態やパラメータを推定する方法である。特に、人工衛星からの観測データが多く得られるようになってきた 1990 年代中頃から、気象学や海洋学の分野でさかんに研究が行われてきた[34]。気象学や海洋学の分野におけるデータ同化の目的は、観測データとシミュレーションモデルを統合することで、再現性を高めるための適切なパラメータや初期状態の推定を行うことである。気象予報を行う際にはシミュレーションの初期状態が必要である。気象観測は様々な場所で行われているが、観測データの数や種類には限りがあり、観測点の分布も不均一である。そのため、観測データのみを使ってシミュレーションモデルの全ての空間点の変数を推定することは非常に困難であり、観測データをそのままシミュレーションの初期値として用いることはできない。そこで、気象予報では、シミュレーションと観測データを組み合わせることで、空間的に連続な初期値を得る。また、データ同化を用いることで、観測されていない時間・空間点におけるデータ（状態）の補間を行うことができる。一方、気象学や海洋学といった分野で用いられるシミュレーションモデルでは、実際の現象を完全に再現することは非常に困難である。そこで、データ同化ではシミュレーションモデルに含まれる不確実性をノイズとしてモデルに導入する。シミュレーションモデルにノイズを取り入れることで、システムの状態は確率分布として表現され、データ同化では状態の確率分布を時間発展方程式によって更新する。そうすることで、不備のあるシミュレーションモデルでも、シミュレーション結果を観測データによって修正し、観測データを再現するようなパラメータを推定することができる。このように、データ同化で行うシミュレーションは確率論的である。また、データ同化では観測データにもノイズが含まれていると考え、観測データも確率分布を持つものとして扱う。以上のように、データ同化は観測データとシミュレーションのそれぞれの欠点を補いあう方法として気象学や海洋学の分野で応用され、発展してきた。

観測データを用いてシミュレーションモデルを修正し、パラメータを推定する手法として、上記で示したデータ同化の方法の他にも最小二乗法や最適化手法がある[35]。最小二乗法や最適化手法はある目的関数を最小化する問題として解釈することができる。すなわち、シミュレーションモデルと観測データの差が小さくなるようなシミュレーションモデルの状態やパラメータを推定する。最小二乗法や最適化手法の多くは局所探索手法と呼ばれ、限られた範囲における最適解（局所的最適値）を探索する手法である。他に、遺伝的アルゴリズムや粒子群最適化法と呼ばれる方法もある。これらは最小二乗法や最適化法と同様に、シミュレーションと観測データの差が小さくなるように目的関数を最小化する方法である。

ただし、最小二乗法などの局所解探索手法とは違って、大域解探索手法と呼ばれる。大域解探索手法は広い範囲で最も目的関数が小さくなるような解（大域的最適値）を探索する手法である。大域的最適値は、その関数の値が他の全ての実行可能点よりも小さい点である。

上記で述べたような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と、アンサンブルカルマンフィルタや粒子フィルタといった方法との違いは、前者は目的関数を最小化する方法であり、後者は確率分布を計算する方法である、という点である[36,37]。データ同化では状態を確率分布として捉え、シミュレーションによってその確率分布の発展を解析する。そしてシミュレーションを観測データと比較することで確率分布を修正し、系の状態やパラメータを推定する。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点が非常に大きなメリットである[38]。さらに、前述のように、シミュレーションモデルに不備があったとしても、観測データを再現するようなパラメータの値を決定することが可能となる。

データ同化には様々な方法があり、例えば、拡張カルマンフィルタ、アンサンブルカルマンフィルタ、粒子フィルタといった方法が発展している。これらは逐次型のデータ同化手法である。逐次型データ同化ではシミュレーションでシステムの状態の経時変化を解析し、観測データを得るたびにシミュレーションを修正することで状態変数やパラメータの推定を行う。カルマンフィルタは線形かつガウス性のある問題に適用可能な方法である。拡張カルマンフィルタはカルマンフィルタを非線形の問題に適用できるように改良したものであり、代表値付近で非線形モデルを線形近似した上でカルマンフィルタを適用する。ただし、非線形性が強い問題への適用は難しい。一方、アンサンブルカルマンフィルタと粒子フィルタはモンテカルロ法を用いたデータ同化の方法であり、多数の実現値によって直接的に確率分布を近似する[39]。これによって強い非線形性のある問題への適用も可能となる。アンサンブルカルマンフィルタと粒子フィルタでは、観測データに基づいてシミュレーションを修正する方法のみが異なっている。アンサンブルカルマンフィルタでは、それぞれの実現値をカルマンフィルタの手順に基づいて修正する一方で、粒子フィルタは実現値を観測データとの近さに基づいて取捨選択し、確率分布を修正する。金属の凝固のような非線形性が強い問題には、アンサンブルカルマンフィルタや粒子フィルタを適用するのが適切である。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多い問題への応用に適している。一方、粒子フィルタはアンサンブルカルマンフィルタよりも多様なシステムへの適用が可能であり、更に実装がより容易であるという特長がある[40]。

近年、データ同化の手法が材料科学の分野で注目され始めている。例えば、佐々木らの研究で、鋼のオーステナイトフェライト変態におけるフェーズフィールドモビリティをアンサンブルカルマンフィルタで推定できる可能性が示されている[41]。また、固相の粒成長における複数の粒界の物性値を同時に推定できる可能性も示されている[42]。ただし、未だにマクロ・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。

1.4 本研究の目的及び本論文の構成

本論文は、データ同化に基づいて金属の凝固シミュレーションにおけるパラメータの推定方法を構築することを目的とする。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。

データ同化においては観測データが必要である。例えば、デンドライトの固液界面物性値を求めるためには凝固組織の時間変化が必要になる。放射光 X 線を用いた近年のその場観察技術を本研究データ同化の方法と組み合わせれば、それが可能になると考えられる。一方、近年の大規模計算技術の進歩によって、分子動力学法によって小さな凝固組織であれば計算できるようになった。例えば、2014 年、澁田らは一辺が 53.4 nm の擬二次元的な正方形の系を用いて、純鉄の過冷液相中における固相核の自由成長の計算を行い、成長した固相の異方性を観測した[43]。この異方性は自然発生したものであり、凝固に伴って現れる結晶の異方性を分子動力学法によって再現できることが示された。また、2016 年には一辺が 106.8 nm の擬二次元的な正方形の系で、固相の核の自然発生が計算可能であることが示された[44]。このように、分子動力学法で計算可能なシステムの大きさは、通常フェーズフィールド法などの連続体モデルで扱われるようなスケールに到達している。したがって、分子動力学シミュレーションの結果とフェーズフィールド・シミュレーションを、同じ時間的および空間的スケールにおいて直接的に比較することができる。そこで本研究では、分子動力学法から計算される組織変化から固液界面物性値を推定する手段の開発を試みた。一方、マクロな凝固伝熱シミュレーションに関しては、多様な実プロセスにすぐに適用できる簡便さを考慮して、温度測定データのみを観測データとして熱伝達係数を推定する方法の開発を試みた。

本論文の構成は以下の通りである。第 1 章においては、金属の凝固シミュレーションの概要と問題点について述べ、その解決方法として有効と考えられるデータ同化について概要を述べた。第 2 章においては、フェーズフィールド法、凝固伝熱解析、およびデータ同化の手法である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について説明する。第 3 章においては、フェーズフィールド法と分子動力学法をデータ同化の枠組みで組み合わせ、固液界面物性値を推定する新しい方法の開発について議論する。第 4 章においては、第 3 章で開発した推定方法を用いて、純金属の固液界面物性値の推定した結果を説明する。第 5 章ではマクロスケールの凝固伝熱シミュレーションを対象とする。具体的には、金型鋳造と鋼の連続鋳造を対象として、データ同化に基づく凝固伝熱解析のパラメータの推定方法を開発し、熱伝達係数の経時変化を推定した結果を説明する。第 6 章においては、本論文を総括する。

参考文献

- [1] Y. Natsume, H. Ishida and K. Sakamoto, *KOBE STEEL ENGINEERING REPORTS*, Vol. 59 No. 1 (2009) 2.
- [2] 中川知和, 武林慶樹, 軽金属, 36 (1986) 445.
- [3] 大中逸雄 : コンピュータ伝熱・凝固解析入門, (1985) 丸善株式会社.
- [4] Y. Natsume, D. Takahashi, K. Kawashima, E. Tanigawa and K. Ohsasa, *ISIJ International*, 54 No.2 (2014) 366.
- [5] C. Gu, C.D. Ridgeway, M.P. Moodispaw and A.A. Luo, *Journal of Materials Processing Technology*, 286 (2020) 116829.
- [6] 出村正彦, 小関敏彦, まてりあ, 58 (2019) 489.
- [7] Y. Dong, K. Bu, Y. Dou and D. Zhang, *Journal of Material Processing Technology*, 211 (2011) 2123.
- [8] N. Cheung, N.S. Santos, J.M.V. Quaresma, G.S. Dulikravich and A. Garcia, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 52 (2009) 451.
- [9] N. Gnanasekaran and C. Balaji, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 54 (2011) 3060.
- [10] G. Palumbo, V. Pignatelli, A. Piccininni, P. Guglielmi, D. Sorgente and L. Tricarico, *Applied Thermal Engineering*, 78 (2015) 682.
- [11] T. Takaki, *ISIJ International*, Vol. 54 No.2 (2014) 437.
- [12] I. Steinbach, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 17 (2009) 073001.
- [13] 高木知弘, 山中晃徳 : フェーズフィールド法—数値シミュレーションによる材料組織設計—, (2012) 養賢堂.
- [14] J. Liu, R.L. Davidchack and H.B. Dong, *Computational Materials Science*, 74 (2013) 92.
- [15] J.R. Morris, *Physical Review B*, 66 (2002) 144104.
- [16] S. Henry, T. Minghetti and M. Rappaz, *Acta Materialia*, Vol. 46 No. 18 (1998) 6431.
- [17] R.L. Davidchack, J.R. Morris, B.B. Laird, *The Journal of Chemical Physics*, 125 (2006) 094710.
- [18] S. Kavousi, B.R. Novak, M.A. Zaeem and D. Moldovan, *Computational Materials Science*, 163 (2019) 218.
- [19] D. Turnbull and J.C. Fisher, *The Journal of Chemical Physics*, 17 (1949) 71.
- [20] D. Turnbull, *Journal of Applied Physics*, 21 (1950) 1022.
- [21] M. Gunduz and J.D. Hunt, *Acta Materialia*, 33 (1985) 1651.
- [22] X.M. Bai and M. Li, *Journal of Chemical Physics*, 124 (2006) 124707.
- [23] J.Q. Broughton and G.H. Gilmer, *Journal of Chemical Physics*, 84 (1986) 5759.
- [24] R.L. Davidchack and B.B. Laird, *Physical Review Letters*, 85 (2000) 4751.
- [25] J.J. Hoyt, M. Asta and A. Karma, *Physical Review Letters*, 86 (2001) 5530.
- [26] J.J. Hoyt, M. Asta and A. Karma, *Materials Science and Engineering R*, 41 (2003) 121.
- [27] J.J. Hoyt, S. Raman, N. Ma and M. Asta, *Computational Materials Science*, 154 (2018) 303.

- [28] A.A. Potter and J.J. Hoyt, *Journal of Crystal Growth*, 327 (2011) 227.
- [29] C.Qi, B. Xu, L.T. Kong and J.F. Li, *Journal of Alloys and Compounds*, 708 (2017) 1073.
- [30] S.K.D. Nath, Y. Shibuta, M. Ohno, T. Takaki and T. Mohri, *ISIJ International*, Vol. 57 No. 10 (2017) 1774.
- [31] J. Monk, Y. Yang, M.I. Mendeleev, M. Asta, J.J. Hoyt and D.Y.Sun, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 18 (2010), 015004.
- [32] Y.F. Gao, Y. Yang, D.Y. Sun, M. Asta and J.J. Hoyt, *Journal of Crystal Growth*, 312 (2010) 3238.
- [33] Y. Watanabe, Y. Shibuta and T. Suzuki, *ISIJ International*, Vol. 50 No. 8 (2010) 1158.
- [34] 樋口知之：データ同化入門—一次世代のシミュレーション技術—，朝倉書店(2011).
- [35] 細川敬祐，平成 21 年度 MTI 研究会サイエンスセッション。
- [36] 樋口知之，統計数理，44 (1996) 19.
- [37] 樋口知之，電子情報通信学会誌，Vol. 88 No. 12 (2005) 989.
- [38] 珠玖隆行，土木学会 応用力学委員会 逆問題小委員会ホームページ 粒子フィルタに関する最新理論 WG (2015).
- [39] 矢野浩一，日本統計学会誌，第 44 卷 第 1 号 (2014) 189.
- [40] 中村和幸，上野玄太，樋口知之，統計数理 53 (2005) 211.
- [41] K. Sasaki, A. Yamanaka, S. Ito and H. Nagao, *Computational Materials Science*, 141 (2018) 141.
- [42] A. Yamanaka, Y. Maeda, K. Sasaki, *Materials and Design*, 165 (2019) 107577.
- [43] Y. Shibuta, K. Oguchi and M. Ohno, *Scripta Materialia*, 86 (2014) 20.
- [44] Y. Shibuta, S. Sakane, T. Takaki and M. Ohno, *Acta Materialia*, 105 (2016) 328.

第2章 データ同化手法および凝固シミュレーションモデル

2.1 緒言

本研究ではデータ同化によって凝固シミュレーションの入力パラメータを推定する。本章ではデータ同化手法、フェーズフィールド法、凝固伝熱解析の手法について説明する。

2.2 データ同化の手法[1]

第1章で述べたように、データ同化は観測データをシミュレーションに取り入れることで状態やパラメータを推定する手法である。本節では本研究で用いたデータ同化手法について説明する。

データ同化はパラメータ推定などの逆解析によく用いられる方法であり、1990年代頃から主に気象学や海洋学の分野でさかんに活用されてきた。1990年代は人工衛星による地表や海面の観測データが大量に蓄積され始めた時期である。気象学や海洋学におけるデータ同化の応用は、その観測データを計算機シミュレーションと統合し、より精度の高いシミュレーションの実施や適切なパラメータ及び初期値の推定を行うことを目的としたものである。また、観測データが得られていない時間・空間における観測データを補間する目的でも用いられている。現在では波の高さや海面水温、海流の実況図および予測図の作成や、気象予報で実際に応用されている。

観測データをシミュレーションに取り入れる方法としては、データ同化の他にも最小二乗法や遺伝的アルゴリズムなど多数の方法がある。最小二乗法や遺伝的アルゴリズムはある目的関数を最小化する方法であるのに対して、データ同化は確率密度分布を計算し、観測データで修正する方法である。推定値の確率密度分布が算出されるため、解の信頼性や多様性の把握が可能となる。また、この確率密度分布はシミュレーションモデルに含まれる不確実性を考慮したものともいえる。不確実性をノイズとしてシミュレーションモデルに取り入れることで、モデルに不備がある場合でも、シミュレーション結果を修正し、観測データを再現するようなパラメータの値を推定することができる。

データ同化には大きく分けて逐次型と非逐次型の方法がある。非逐次型の方法とは、観測された時系列データが全てそろっている状態でデータ同化を行う方法であり、四次元変分法などの方法が発展している。一方、逐次型の方法はカルマンフィルタや拡張カルマンフィルタ、アンサンブルカルマンフィルタ、粒子フィルタといった方法が発展しており、観測データが得られるたびに逐次的にデータ同化を行う。非逐次型よりも逐次型の方が一般に実

装が容易であり、汎用性も高い。本研究で扱うのは逐次型の方法である。

以下に逐次型のデータ同化の方法の概要を説明する。データ同化では時系列データを表現する状態空間モデルと呼ばれるモデルを扱う。次の節で詳細に説明するが、状態空間モデルは、システム・モデルと呼ばれるシステムの状態を表す式と、観測モデルと呼ばれる観測データを表す式で成り立っている。データ同化では観測モデルを用いてシステム・モデルを修正する。そしてこの修正の作業はフィルタリングと呼ばれる。データ同化には様々な方法が存在するが、扱う問題の種類とフィルタリングの方法がそれぞれ異なっている。

カルマンフィルタは線形かつガウス性を持つ問題を対象とした方法であり、推定対象の変数が正規分布の確率分布に従うとし、その確率密度分布の平均値と分散を観測データによって逐次修正する。拡張カルマンフィルタはカルマンフィルタを非線形システムに応用できるようにしたものであり、代表値付近で非線形モデルを線形近似し、カルマンフィルタを適用する。このとき、解析的な微分が難しい場合は数値微分を行う必要があるが、システムの次元数が大きい場合には数値微分の計算が困難となる。また、非線形性の大きい問題への適用は難しい。アンサンブルカルマンフィルタと粒子フィルタはモンテカルロ法に基づいたデータ同化の方法である。モンテカルロ法は多数の実現値で確率密度分布を近似する方法である。そうすることで、非線形性の強い問題にも適用可能である。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方法のみが異なっている。金属の凝固のような非線形性が強い問題には、アンサンブルカルマンフィルタや粒子フィルタの応用が適切である。本研究では粒子フィルタおよびアンサンブルカルマンフィルタに基づいて凝固シミュレーションのパラメータ推定方法を開発した。

次の節からは、状態空間モデルと粒子フィルタおよびアンサンブルカルマンフィルタのフィルタリングの方法について説明する。

2.2.1 状態空間モデル

状態空間モデルはデータ同化において基本となるモデルである。ここで、時系列データとは時間の経過に伴って変化するデータのことであり、時系列データに用いるモデルのことを時系列モデルとも呼ぶ。状態空間モデルは、システムの状態を示す「システム・モデル」と、観測した結果を示す「観測モデル」の2つから成り立っている。

ある現象を記述するために必要な値（状態変数や物性値）を1つのベクトルで表現したものを状態ベクトルと呼ぶ。例えば、フェーズフィールド法による純金属の凝固シミュレーションでは以下のような状態ベクトル \mathbf{x}_t を扱う。

$$\zeta_{i,t} = \begin{pmatrix} T_{i,t} \\ \phi_{i,t} \\ C_{i,t} \end{pmatrix} \quad (2.1)$$

$$\mathbf{x}_t = \begin{pmatrix} \zeta_{1,t} \\ \zeta_{2,t} \\ \zeta_{3,t} \\ \vdots \\ \zeta_{N,t} \end{pmatrix} \quad (2.2)$$

ここで、 $\mathbf{T}_{i,t}$ は時刻 t における格子点 i の温度であり、それらをひとつのベクトルとして表現したものである。同様に $\boldsymbol{\phi}_{i,t}$ は秩序変数、 $\mathbf{C}_{i,t}$ は入力パラメータのベクトルである。ある現象の時間発展を数値シミュレーションで解析する際には、多くの場合、空間や時間の偏微分方程式系を離散化して解く。式(2.1)の $\zeta_{i,t}$ は空間上の離散化されたある点、つまり格子点 i における時刻 t の温度 $\mathbf{T}_{i,t}$ や秩序変数 $\boldsymbol{\phi}_{i,t}$ 、現象を記述するために必要な全てのパラメータ $\mathbf{C}_{i,t}$ を1つのベクトルにまとめたものである。ベクトル $\zeta_{i,t}$ は時刻 t において全ての格子点に定義される。式(2.2)の \mathbf{x}_t は時刻 t における全ての格子点の $\zeta_{i,t}$ を、更に一つのベクトルにまとめたものであり、この \mathbf{x}_t を状態ベクトルと呼ぶ。ここで、 N は格子点の総数である。シミュレーションでは状態ベクトル \mathbf{x}_t の時間発展を計算する。時刻 t において状態ベクトルが \mathbf{x}_t 、時間発展式が f であるとき、時刻 $t+1$ における状態ベクトルは式(2.3)によって表される。

$$\mathbf{x}_{t+1} = f(\mathbf{x}_t) \quad (2.3)$$

式(2.3)は一般的な時間発展式であり、このようなモデルにおける時間発展式の解は一意的に決定される。ここで重要な点は、式(2.3)に示すモデルが表す時間発展過程、すなわち f は現実の時間発展を完全に厳密に表現できているとは言い切れない場合があることである。微分方程式に含まれているパラメータに不確実性がある場合や、シミュレーションモデルが簡略化されている場合などがこれに該当する。また、計算機によるシミュレーションでは微分方程式を離散化して解くため、それに伴って誤差が発生し、シミュレーション結果はもとの微分方程式の解とは完全には一致しない。このようなシミュレーションモデルの不確かさを扱うためにシステム・ノイズ \mathbf{v}_t を導入する。その結果、シミュレーションモデルは式(2.4)のように表される。

$$\mathbf{x}_{t+1} = f(\mathbf{x}_t) + \mathbf{v}_t \quad (2.4)$$

このとき、 \mathbf{x}_t および \mathbf{x}_{t+1} はシステム・ノイズの確率分布に従う確率変数である。式(2.3)に示すようなシミュレーションモデルが決定論的であるのに対して、式(2.4)のモデルは確率論的である。式(2.4)のようにシミュレーションモデルの不確かさを考慮した確率論的なシミュレーションのモデルをシステム・モデルと呼ぶ。

一方、観測モデルは観測データとシミュレーション結果の関係を表したものである。状態ベクトルに含まれる要素のうち、実際に観測データとして得られるのは一般にごく一部である。したがって、シミュレーション結果を観測データと比較する際には、状態ベクトルに含まれる要素のうち実際に観測される要素を抽出する必要がある。そのために観測演算子 h を導入する。 h を用いたとき、観測される要素と状態ベクトルの関係は式(2.5)のように表される。

$$\mathbf{x}'_t = h(\mathbf{x}_t) \quad (2.5)$$

\mathbf{x}'_t は状態ベクトルのうち実際に観測される要素である。また、ここで観測誤差についても考慮する必要がある。観測データには誤差が含まれ、必ずしも真の値であると言い切れないことが多々ある。また、一方でシミュレーションモデルは厳密に現実の現象を再現することができない場合が多い。すなわち、 \mathbf{x}'_t および \mathbf{x}_t は不確かさを含んでいると考えることができる。観測モデルでは、観測の不確かさとシミュレーションモデルの不確かさを考慮するために観測ノイズ \mathbf{w}_t を導入し、観測データとシミュレーション結果の関係を次のように表現する。

$$\mathbf{y}_t = h(\mathbf{x}_t) + \mathbf{w}_t \quad (2.6)$$

式(2.6)は観測モデルと呼ばれる。

式(2.4)に示したシステム・モデルと式(2.6)に示した観測モデルを合わせたモデルが状態空間モデルである。粒子フィルタやアンサンブルカルマンフィルタなどのフィルタリング技術においては、観測モデルを用いてシステム・モデルを修正し、より尤もらしい推定結果を得ることを目指す。システム・モデルの修正はフィルタリングと呼ばれる。次節でフィルタリングについて説明する。

2.2.2 フィルタリング

本研究ではデータ同化の方法として粒子フィルタおよびアンサンブルカルマンフィルタを用いた。このようなフィルタリング技術によってパラメータの推定を行うとき、具体的には「予測分布」「フィルタ分布」と呼ばれる2つの確率密度分布を扱っている。

式(2.4)で示されるように、時間発展方程式 f によって時刻 t における状態ベクトル \mathbf{x}_t の分布を更新すると、ひとつ先の時刻 $t+1$ における状態ベクトル \mathbf{x}_{t+1} の分布が得られる。この操作はひとつ先の時刻の分布を予測する操作であるので一期先予測と呼ばれ、得られた分布は予測分布と呼ばれる。この場合、予測分布として得られた状態ベクトル \mathbf{x}_{t+1} の分布は時刻 t までに得られている観測データの情報を含んでいる。一方、フィルタ分布は、観測データが得られている時刻で、観測データを取り入れて状態ベクトルの確率密度分布を修正した結果得られる分布である。粒子フィルタやアンサンブルカルマンフィルタなどのフィルタリング技術では、修正の方法はフィルタの種類によって様々であるが、修正の操作は共通してフィルタリングと呼ばれる。ある時刻 t においてフィルタリングを行い得られたフィルタ分布は、時刻 t までの観測データの情報を含んでいる。粒子フィルタ・アンサンブルカルマンフィルタを始めとするフィルタは、一期先予測とフィルタリングを繰り返しながら状態ベクトルの分布の逐次推定を行う。

2.2.3 粒子フィルタのアルゴリズム

粒子フィルタは北川らおよびGordonらによって提案された方法であり、モンテカルロフ

フィルタ、ブーストラップ法などとも呼ばれる[2,3]。モンテカルロ法を用いているため、非線形性の強い問題も扱うことができる。モンテカルロ法は確率密度分布の近似方法であり、アンサンブル近似とも呼ばれる。N個のサンプルの集合を用いて、ある確率変数 x の確率密度分布を式(2.7)のように近似する。

$$p(x) \doteq \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \delta(x - x^i) \quad (2.7)$$

$p(x)$ は x の確率密度分布である。 \doteq はアンサンブル近似を表す。粒子フィルタでは、それぞれのサンプルのことを粒子、粒子の集合のことをアンサンブルと呼ぶ。それぞれの粒子 x^i はそれぞれ異なった条件下で行われる複数のシミュレーションであり、デルタ関数に従う。

$p(x)$ はデルタ関数に従う多数の実現値によって近似されている。

アンサンブル近似を用いる代表的なデータ同化の方法には、粒子フィルタの他にアンサンブルカルマンフィルタがある。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考え方に基づいてフィルタリングを行う。一方、粒子フィルタは粒子の取捨選択によって確率密度分布を修正する。アンサンブルカルマンフィルタなど、カルマンフィルタに基づく方法は状態の確率密度分布がガウス分布であることを想定している。一方、粒子フィルタは、状態の確率密度分布がガウス分布である場合と非ガウス性である場合の両方に用いることができる。以下ではいくつかの時刻で観測データ \mathbf{y}_t が得られている場合について、粒子フィルタの具体的な手順を示す。粒子フィルタの手順は①粒子の生成、②一期先予測、③フィルタリングの3つに分けることができる。

① 粒子の生成

粒子フィルタに用いるための粒子として、多数のシミュレーションシステムを用意する。粒子フィルタでは多数のシミュレーションをそれぞれ異なった条件で同時に行う。本研究では、多数の凝固伝熱解析、またはフェーズフィールド法による凝固シミュレーションを同時に行う。粒子は推定対象となるパラメータの値がそれぞれ異なっている。それぞれの粒子に与えるパラメータの初期値は乱数によって決定した。

② 一期先予測

手順①で生成したそれぞれの粒子について、状態ベクトルの時間発展を解析する。本研究ではシステム・ノイズ \mathbf{v}_t は正規分布であるとした。また、観測データが得られていない時刻ではシステム・ノイズは導入せず、観測データが得られている時刻において、以下で説明するフィルタリングの操作の後与えることとした。

③ フィルタリング

手順②によってそれぞれの粒子でシミュレーションを行い、観測データが得られている時刻 t に達したとき、フィルタリングを行う。粒子フィルタにおけるフィルタリングは、尤度の計算とリサンプリングの2つの手順に分けることができる。以下に具体的な手順を示す。

③-1 尤度の計算

観測データ y_t に対する各粒子の尤度を計算する。尤度とは観測データ y_t に対してその粒子（実現値）がどの程度もつもらしいか表す値である。観測ノイズが平均 0、分散共分散行列が Σ の正規分布に従うとき、粒子 i の尤度は式(2.8)のように表される。

$$\lambda_t^i = \frac{1}{\sqrt{2\pi^l \Sigma}} \exp \left[-\frac{1}{2} (y_t - h(x_t^i))' \Sigma^{-1} (y_t - h(x_t^i)) \right] \quad (2.8)$$

ここで l は観測データの次元、 λ_t^i は時刻 t における粒子 i の尤度である。

③-2 リサンプリング

リサンプリングは手順③-1 で計算された尤度に基づいて粒子を取捨選択する操作である。まず、手順③-1 で得られた各粒子の尤度を規格化する。時刻 t における粒子 i の規格化された尤度を β_t^i とすると、 β_t^i は式(2.9)によって表される。

$$\beta_t^i = \frac{\lambda_t^i}{\sum_i \lambda_t^i} \quad (2.9)$$

次に、ある粒子 i が β_t^i の確率で抽出されるような復元抽出を、粒子の総数 N と同じ回数分だけ行う。この復元抽出の操作がリサンプリングである。リサンプリングが行われた後は高い尤度を持つ粒子のみが重複を許して残ることとなる。リサンプリングにはいくつかの方法が考えられるが、本研究では等差数列を利用する方法を用いた。リサンプリング前の粒子のうち i 番目のものを x^i 、リサンプリング後の粒子のうち i 番目のものを X^i として手順を簡単に示す。まず、等差数列として式(2.10)を用いる。

$$\eta^i = \frac{i - \varepsilon}{N} \quad (2.10)$$

η^i は等差数列、 ε は $0 < \varepsilon \leq 1$ を満たす実数である。一方、数列 b^i を式(2.11)のように定義する。

$$b^i = \sum_{j=1}^i \beta^j \quad (2.11)$$

$i = 1, \dots, N$ について、 $b^{i-1} \leq \eta^j < b^i$ を満たす j を探し、 $X^j = x^i$ として定義する。

以上がリサンプリングの操作であり、得られた粒子で近似される尤度関数はフィルタ分布と呼ばれる。複製された粒子の多くは手順③-1 で計算された尤度が高い粒子である。本研究ではリサンプリングの後、各粒子にシステム・ノイズを与えた。本研究では尤度の計算、リサンプリング、システム・ノイズの導入の一連の流れをフィルタリングと呼ぶこととする。フィルタリングの後、得られた粒子を用いて手順②が続行される。粒子フィルタでは手順②と③を繰り返すことで推定を行う。

2.2.4 アンサンブルカルマンフィルタのアルゴリズム

アンサンブルカルマンフィルタは粒子フィルタと同じくモンテカルロ法に基づくデータ

同化の方法である。粒子フィルタとアンサンブルカルマンフィルタではフィルタリングの方法が異なっている。以下では、アンサンブルカルマンフィルタのフィルタリングの手順について説明する。

アンサンブルカルマンフィルタのフィルタリングでは、各粒子の状態ベクトルが以下の式によって更新される。

$$\mathbf{X}_t^i = \mathbf{x}_t^i + \mathbf{K}_t(\mathbf{y}_t - \mathbf{H}\mathbf{x}_t^i) \quad (2.12)$$

ここで \mathbf{X}_t^i はフィルタリングによって更新された後の状態ベクトル、 \mathbf{y}_t は観測データ、 \mathbf{H} は状態ベクトルから実際に観測されるデータを抽出するための観測ベクトルである。このように、アンサンブルカルマンフィルタでは粒子フィルタとは違い状態ベクトルと観測データの間に関係を想定している。また、 \mathbf{K}_t はカルマンゲインと呼ばれる行列であり、以下の式で計算することができる。

$$\mathbf{K}_t = \hat{\mathbf{V}}_t \mathbf{H}' (\mathbf{H} \hat{\mathbf{V}}_t \mathbf{H}' + \mathbf{R}_t) \quad (2.13)$$

ここで $\hat{\mathbf{V}}_t$ はアンサンブルの分散共分散行列、 \mathbf{R}_t は観測ノイズの分散共分散行列である。また、 $\hat{\mathbf{V}}_t$ は以下の式で計算される。

$$\hat{\mathbf{V}}_t = \frac{1}{N-1} \sum_{j=1}^N \tilde{\mathbf{x}}_t^j \tilde{\mathbf{x}}_t^{j'} \quad (2.14)$$

$$\tilde{\mathbf{x}}_t^i = \mathbf{x}_t^i - \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \mathbf{x}_t^j \quad (2.15)$$

ここで N は粒子の総数である。

以上がアンサンブルカルマンフィルタのフィルタリングの手続きである。粒子フィルタのフィルタリングが尤度に基づいて粒子を取捨選択する操作であるのに対して、アンサンブルカルマンフィルタは各粒子の状態ベクトルを直接修正することでフィルタリングを行う。この修正の手続きはカルマンフィルタに基づくものである。アンサンブルカルマンフィルタでは粒子フィルタのようにフィルタリングの操作の中で粒子数が減少することがなく、粒子の退化の問題が発生しない。したがって、次元数の大きい非線形問題への応用に適した方法である。

2.3 フェーズフィールド法

本研究では純金属の高過冷度における等温凝固を扱うため、それに適したモデルとして Bragard らによって提案されたモデル[5]を用いた。詳細を以下に説明する。

純金属の凝固を解析するためのフェーズフィールド方程式の一般的な形を示す。

$$\tau(\mathbf{n}) \frac{\partial \phi}{\partial t} = - \frac{\delta F}{\delta \phi} \quad (2.16)$$

$\tau(\mathbf{n})$ は異方性を持つ係数、 F はエネルギー汎関数である。 F は以下のような式で表すことができる。

$$F = \int d\vec{x} \left[\frac{W^2(\mathbf{n})}{2} |\nabla \phi|^2 + f_{dw}(\phi, u) \right] \quad (2.17)$$

ここで $W(\mathbf{n}) = W_0 a_\gamma(\mathbf{n})$ である。 $a_\gamma(\mathbf{n})$ は固液界面エネルギーの異方性関数である。非積分関数は単位体積当たりの自由エネルギー、すなわち自由エネルギー密度である。積分は体積について行われる。非積分関数の第一項は勾配エネルギーであり、固液界面が存在することによる付加的なエネルギーを示している。非積分関数の第2項 $f_{dw}(\phi, u)$ は化学的自由エネルギー密度である。フェーズフィールド法には様々なモデルがあり、モデルによって $f_{dw}(\phi, u)$ の選び方は異なるが、いずれの場合も f_{dw} は以下の3点を満足する必要がある。液相で $\phi = -1$ 、固相で $\phi = 1$ とした場合、まず、液相 ($\phi = -1$) と固相 ($\phi = 1$) で極小値を持つダブルウェルポテンシャルである必要がある。このことによって幅 W を持つ界面が存在し、 ϕ が界面領域の中で界面に対して垂直な方向に-1 から 1 まで変化することが保証される。また、凝固の駆動力は液相と固相のバルクの自由エネルギー差であるが、この自由エネルギー差が固液界面温度の単調増加関数となっていることも要求される。これは、ここでは $f_{dw}(\phi=1, u) - f_{dw}(\phi=-1, u)$ が単調増加するということである。更に、融点とは異なる温度においても、 $\phi = \pm 1$ において f_{dw} が極小値となる必要もある。

フェーズフィールド法のモデルの中で、現在多く用いられているのは Karma によって提案された定量的モデルである[6]。定量的モデルで用いられる f_{dw} を以下に示す。

$$f_{dw}(\phi, u) = f(\phi) + \lambda u g(\phi) \quad (2.18)$$

$$f(\phi) = -\frac{1}{2}\phi^2 + \frac{1}{4}\phi^4 \quad (2.19)$$

$$g(\phi) = \phi - \frac{2}{3}\phi^3 + \frac{1}{5}\phi^5 \quad (2.20)$$

ここで λ は無次元の係数である。定量的モデルが提案される以前には **sharp interface limit** に基づくモデルが用いられていたが、過冷度が非常に大きい場合にしか用いることができなことが問題となっていた。これは **sharp interface limit** では界面内に温度分布が生じないと想定しているためである。しかし、純金属の凝固では界面領域内で温度分布が生じるため、界面幅が変化すると温度分布も変化し、用いる格子サイズや界面幅によってシミュレーション結果が変わってしまう。したがって、**sharp interface limit** に基づくモデルは、界面の曲率の影響に比べて界面カイネティックが無視できるほど小さい条件、すなわち低過冷度における凝固に適用できない。**sharp interface limit** に基づくモデルでは、カイネティック係数は $\beta(\mathbf{n}) = a_1 \tau(\mathbf{n}) / \lambda W(\mathbf{n})$ と定義される。ここで $a_1 = 0.8839$ である。対して、定量的モデルは **thin interface limit** に基づくモデルであり、カイネティック係数を以下のように修正する

ことで格子サイズや界面幅に結果が依存しない定量的なデンドライト形成シミュレーションを可能とした。

$$\beta(n) = a_1 \frac{\tau(n)}{\lambda W(n)} \left[1 - a_2 \lambda \frac{W^2(n)}{D\tau(n)} \right] \quad (2.21)$$

ここで、 $a_2 = 0.6267$ である。このとき、カイネティック係数を消去することができる。しかし、この **thin interface limit** に基づくモデルでは高過冷度における固液界面の移動を正確に再現することができないという問題が指摘された。Bragard らは純 Ni の凝固を例にとって、定量的モデルのこの問題点を指摘し、高過冷度の凝固に適用できる新たなモデルを提案した。純 Ni の凝固では、定量的モデルによって平滑界面の移動を解析すると、界面の移動速度が $30 \sim 60 \text{ ms}^{-1}$ という高い範囲である場合、移動速度は界面過冷度の非線形関数となった。しかし同じ速度範囲において、原子シミュレーションでは、移動速度と界面過冷度の関係は線形のままであると報告されている。これは、定量的モデルでは高過冷度における固液界面の移動を正確に再現できないということを意味している。この問題を解決するため、Bragard らは f_{dw} に関数 h を導入し、界面カイネティックの影響が顕著になる高過冷度における凝固にも適用できるようなフェーズフィールドモデルを開発した。提案されたモデルでは、式(2.18)に示した $f_{dw}(\phi, u)$ の一般系を以下のように書き換える。

$$f_{dw}(\phi, u) = f(\phi) + h(\lambda u)g(\phi) \quad (2.22)$$

h が単調増加する関数であれば、上記で示した $f_{dw}(\phi, u)$ に要求される 3 つの条件は満たされている。また Bragard らは同時に、高過冷度でのデンドライト成長における界面カイネティック係数についても議論している。高過冷度凝固におけるデンドライトの中心軸の温度分布に着目すると、デンドライト先端部における固液界面内の温度変化は界面全体の過冷度よりも小さくなっていることが指摘された。したがって、**thin interface limit** によってカイネティック係数に与えた修正を無視することができる。**sharp interface limit** から得られた界面カイネティック係数 $\beta(n) = a_1 \tau(n) / \lambda W(n)$ を $B(n)$ とすると、カイネティック係数は以下のように書き換えられる。

$$\beta(n) = B(n) \left[1 - a_2 \lambda \frac{\Gamma}{DB(n)} \right] \quad (2.23)$$

$$\Gamma = a_1 W_0 / \lambda \quad (2.24)$$

このとき、右辺のかっこ内の第 2 項は 1.0 に比べて十分に小さくなるため、 $\beta(n) \approx B(n)$ となる。

フェーズフィールド方程式の基本形に異方性を導入すると、以下のような式になる。

$$\tau(n) \partial_i \phi = \nabla [W(n)^2 \nabla \phi] + \sum_i \partial_i \left(|\nabla \phi|^2 W(n) \frac{\partial W(n)}{\partial (\partial_i \phi)} \right) + \phi - \phi^3 - h(u\lambda)(1 - \phi^2)^2 + \tau(n)\xi \quad (2.25)$$

$$\tau(n) = \frac{32\lambda^2 d_0 \beta_0}{25} a_\gamma(n) a_\beta(n) \quad (2.26)$$

$$u \equiv \frac{T - T_m}{L/C_p} \quad (2.27)$$

$$a_\beta(n) = (1 + 3\kappa) \left(1 - \frac{4\kappa}{1 + 3\kappa} \sum_{i=1}^3 n_i^4 \right) \quad (2.28)$$

ここで T_m は融点、 L は潜熱、 C_p は比熱である。 β_0 と κ はそれぞれ界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータ、 $d_0 \equiv \gamma_0 T_m C_p / \Delta H^2$ である。また、本研究では $h(u\lambda) = u\lambda$ とした [7]。また、温度はシステム全体で均一とした。 ξ は熱の揺らぎを表現するために与えられているノイズである。ノイズは乱変数として空間及び時間的に相互作用しないように選ばれ、分散が揺動散逸定理に従うような正規分布に従う。分散の大きさは実験的なパラメータであり、以下のように表すことができる。

$$F_{expt} = \frac{k_B T_m^3 C_p}{L^2 d_0^3} \quad (2.29)$$

ここで k_B はボルツマン係数である。式(2.25)を二次精度の有限差分法で差分化し、一次精度のオイラー法で解いた。用いたパラメータを表 2.1 に示す。データ同化には分子動力学法で得られた観測データを用いるが、表 2.1 に示したのは分子動力学法で用いた原子間ポテンシャルにおける物性値である。

2.4 凝固伝熱解析

本研究では casting における凝固伝熱解析のパラメータを推定した。本節ではそのために行った凝固伝熱解析について説明する。本研究では金型 casting と連続 casting を扱ったが、共通して以下のような仮定を用いた。

- ・ 鋳型や溶湯は鋳型の外側からのみによって冷却される。
- ・ 鋳型の外側の温度は一定である。
- ・ 溶湯の局所領域における温度と固相率の関係はレバールールに従う。
- ・ 密度、比熱、凝固潜熱は温度や時間によらず同一の相において一定である。

また、第 5 章で詳細に説明するが、金型 casting と連続 casting の両方で一次元の伝熱を扱った。式(2.30)に鋳型、式(2.31)に溶湯の熱伝導方程式を示す。

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (2.30)$$

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + L \frac{\partial f_s}{\partial t} \quad (2.31)$$

ここで、 T は温度、 t は時間、 f_s は固相率、 ρ は密度、 C_p は比熱、 k は熱伝導率、 L は潜熱である。これを差分法の陽解法で解いた。空間方向には二次精度の空間差分を行い、時間方

向には前進オイラー差分法を用いた。また、式(2.31)には凝固潜熱の効果が含まれるため、等価比熱法を用いた。一方、鋳型-溶湯間の熱伝達は以下の式で表される。

$$q = h(T_{\text{alloy}} - T_{\text{mold}}) \quad (2.32)$$

ここで q は鋳型 - 溶湯間を通過する熱流束、 h は鋳型-溶湯間の熱伝達係数、 T_{alloy} は鋳型-溶湯界面の溶湯側の温度、 T_{mold} は鋳型側の温度である。式(2.30)(2.31)(2.32)を用いて凝固伝熱解析を行い、データ同化を適用することでパラメータの推定を試みた。

2.5 結言

本研究で用いたデータ同化の手法、フェーズフィールド法、凝固伝熱解析のモデルについて説明した。説明したデータ同化の手法は粒子フィルタおよびアンサンブルカルマンフィルタであり、非線形性の強い問題にも適用可能な強力な手法である。本研究ではデータ同化をフェーズフィールド法に適用することで固液界面物性値、凝固伝熱解析に適用することで熱伝導率や鋳型-溶湯間の熱伝達係数を推定することを試みた。

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] G. Kitagawa, *Journal of Computational and Graphical Statistics*, 5 (1996) 1.
- [3] N.J. Gordon, D.J. Salmond and A.F.M. Smith, *IEE Proceedings F*, Vol. 140 No.2 (1993) 107.
- [4] R.R. Zope and Y. Mishin, *Physical Review B*, 68 (2003) 024102.
- [5] J. Bragard, A. Karma and Y.H. Lee, *Interface Science*, 10 (2002) 121.
- [6] A. Karma and W.J. Rappel, *Physical Review E*, 57 (1998) 4323.
- [7] M. Ohno, Y. Oka, S. Sakane, Y. Shibuta and T. Takaki, *Physical Review E*, 101 (2020) 052121.

表 2.1 フェーズフィールド法による凝固シミュレーションの入力パラメータ

パラメータ	値
比熱, C_p	$3.38 \times 10^6 \text{ JK}^{-1}\text{m}^{-3}$
潜熱, L	$1.09 \times 10^9 \text{ Jm}^{-3}$
融点, T_m	870 K

第3章 固液界面物性値の推定に対するデータ同化の有効性の検証

3.1 緒言

本研究では分子動力学法の計算結果を観測データとして、フェーズフィールド法とデータ同化することで、測定が困難な固液界面物性値の推定方法の開発を試みた。この方法では、単一の分子動力学計算の結果から固液界面エネルギーと界面カイネティック係数、そして異方性パラメータといった全ての固液界面物性値を推定可能であることが期待できる。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る[1-4]。双子実験は、あらかじめ真の状態（や値）と定めた条件を用いてシミュレーションを行い、それによって得られた計算結果を観測データとしてデータ同化に用いて真の状態の推定を行うことで、データ同化の効率や精度を検証するために行われる実験である。なお、推定を行うときにはあらかじめ定められた真の条件は未知であるとされる。本研究では、固液界面物性値にあらかじめ値を定め、それを真の値とする。そして、真の値を用いてフェーズフィールド法による凝固シミュレーションを行い、得られた結果を観測データとした。この観測データから、真の値をデータ同化で推定できるか否か、推定できるのであればその精度を高くするにはどうしたらよいかを明らかにすることがこの章の目的である。この双子実験におけるデータ同化では、固液界面エネルギーに候補値（真の値とは異なる値）を与えてフェーズフィールド法によって凝固シミュレーションを行う。そのシミュレーションに観測データをデータ同化によって取り入れることで、候補値が修正されて真の値に近づけば、データ同化が有効に作用しているとみなすことができる。双子実験では真の状態やパラメータがあらかじめわかっているため、得られた推定結果の精度を適切に評価することができる。観測データを作成するために用いるシミュレーションモデルがデータ同化で用いるシミュレーションモデルと同じであることから、双子実験と呼ばれている。

双子実験は実際に得られた観測データによって推定を行うための前段階として、適切なデータ同化の方法やハイパーパラメータを検討するために用いられている。本研究でも最初に双子実験を行い、固液界面物性値の推定に対して最適なデータ同化の方法を検討した。

3.2 計算方法

3.2.1 観測データの計算方法

双子実験における観測データを作成するために、固液界面物性値にあらかじめ真の値を

定め、その値を用いてフェーズフィールド法による凝固シミュレーションを行った。ここで想定した真の値を表 3.1 に示す。固液界面エネルギーの平均値 γ_0 と異方性パラメータ ε_1 、 ε_2 は Asadi らによって MEAM ポテンシャルを用いて算出された値[5]、界面カイネティック係数の平均値 β_0 は Nath らによって EAM ポテンシャルを用いて算出された値[6]である。界面カイネティック係数の異方性パラメータ κ の値は、表に示した入力パラメータをフェーズフィールド法に適用したとき、結果として得られる固相の形状が分子動力学法で得られた観測データと大きく異ならないような値とした。その他の入力パラメータを表 3.2 に示す。これらは観測データを得る際に用いた分子動力学法の原子間ポテンシャルで算出された物性値である。第 4 章でも述べるが、本研究で用いた分子動力学法で得られた観測データは東京大学の澁田靖准教授から提供を受けたものである。表 3.2 に示したパラメータも、観測データと共に提供を受けた値とした。続いて、計算の初期状態を Fig. 3.1 に示す。境界条件にはミラー境界条件を用いた。格子点間隔を dx nm として、液相の中心に直径が $4 dx$ nm の固相の核を配置し、系全体を 695 K に保持して等温凝固の解析を行った。このとき、第 2 章で説明したモデルを用いて計算を行った。そして、一定の時間間隔 t_f で計算結果のスナップショットを取得し、それらを観測データとした。以降、この t_f をフィルタリング間隔と呼ぶこととする。すなわち、この双子実験における観測データとは、シミュレーションの結果得られた経時変化する凝固組織のスナップショットであり、これは実際に分子動力学法からも得られるデータである。

また、本研究では固液界面エネルギーの異方性パラメータ ε_1 および ε_2 の両方を推定するため、(011)面上での固相の成長を解析した。結晶の方位は Fig. 3.1 に示す通りとした。3 次元における固液界面エネルギーは以下のような式で表現できる。

$$\gamma(\mathbf{n}) = \gamma_0 a_\gamma(\mathbf{n}) \quad (3.1)$$

$$a_\gamma(\mathbf{n}) = 1 + \varepsilon_1 \left(\sum_{i=1}^3 n_i^4 - \frac{3}{5} \right) + \varepsilon_2 \left(3 \sum_{i=1}^3 n_i^4 + 66n_1^2 n_2^2 n_3^2 - 17 \right) \quad (3.2)$$

γ_0 は固液界面エネルギーの平均値、 ε_1 、 ε_2 は異方性パラメータである。 \mathbf{n} は固液界面に垂直なベクトル、 n_1 、 n_2 、 n_3 は \mathbf{n} の成分である。この式を \mathbf{n} について整理すると以下のようなになる。

$$\gamma(\mathbf{n}) = \gamma_0 \left[1 + (\varepsilon_1 + 3\varepsilon_2) \sum_{i=1}^3 n_i^4 + 66\varepsilon_2 n_1^2 n_2^2 n_3^2 - \frac{3}{5}\varepsilon_1 - 17\varepsilon_2 \right] \quad (3.3)$$

例えば(001)面上では常に $n_3 = 0$ となるため、右辺かつこ内の第 3 項が常に 0 となる。このとき固液界面エネルギーは $[(\varepsilon_1 + 3\varepsilon_2) \sum_{i=1}^3 n_i^4]$ のみによって変化するため、 ε_1 と ε_2 の寄与が独立に現れず、それぞれの値を推定することができない。一方、(011)面上では n_1 、 n_2 、 n_3 の全てが常に 0 とならないので、 ε_1 と ε_2 両方の推定が可能となる。

以上が観測データの作成方法である。

3.2.2 粒子フィルタの計算条件

各粒子のシミュレーションにおける固液界面物性値には、ある範囲で発生させた乱数をまず与えた。固液界面エネルギー γ_0 は $0 \sim \gamma_0^{ini}$ Jm⁻²、異方性パラメータ ε_1 は $0 \sim \varepsilon_1^{ini}$ 、 ε_2 は $0 \sim \varepsilon_2^{ini}$ 、界面カイネティック係数は $0 \sim \beta_0^{ini}$ sm⁻¹、異方性パラメータ κ は $0 \sim \kappa^{ini}$ の範囲で乱数を発生させた。他の計算条件に関しては、観測データを作成するために実施したシミュレーションと同条件を設定した。Fig. 3.2 に粒子フィルタの手順の概念図を示す。各粒子の固液界面物性値を設定した後、それぞれの粒子（系）をフェーズフィールド法によって同時に時間更新し、観測データが得られている時刻でフィルタリングを行った。フィルタリングでは観測データに基づいて各粒子の尤度を計算する。尤度はシミュレーション結果が観測データにどの程度あてはまるかを示す値である。そして尤度の大きさに基づいて粒子の複製または破棄を行う。フィルタリングによって各粒子の固液界面物性値が修正され、真の値に近づくことが期待できる。

以下にフィルタリングの詳細を述べる。粒子フィルタのフィルタリングでは、まず観測データを用いて各粒子の尤度を計算する。本研究では、まず、固液界面領域の秩序変数、つまり ϕ が $-1 < \phi < 1$ の観測データと粒子の結果を比較して尤度を計算した。

時刻 t における粒子 i の尤度 λ_t^i は下記の式から求めた。

$$\lambda_t^i \propto \exp \left[-\frac{1}{2} (\boldsymbol{\phi}^{t,ob} - \boldsymbol{\phi}^{t,i})' \boldsymbol{\Sigma}^{-1} (\boldsymbol{\phi}^{t,ob} - \boldsymbol{\phi}^{t,i}) \right] \quad (3.4)$$

$$\boldsymbol{\Sigma} = \begin{bmatrix} \sigma_\phi & & \\ & \ddots & \\ & & \sigma_\phi \end{bmatrix} \quad (3.5)$$

$\boldsymbol{\phi}^{t,ob}$ は観測データであり、 $-1 < \phi < 1$ の範囲にある秩序変数 ϕ である。これはこの式では、 $1 \times m$ 行列としており、ここで m は観測データの中で秩序変数 ϕ が $-1 < \phi < 1$ である格子点 (k, l) の数である。行列 $\boldsymbol{\phi}^{t,i}$ は粒子 i における計算結果であり、格子点 (k, l) の秩序変数からなる $1 \times m$ 行列である。したがって、 $(\boldsymbol{\phi}^{t,ob} - \boldsymbol{\phi}^{t,i})$ は観測データと粒子 i の秩序変数の差を表している。ここで、 ϕ が $-1 < \phi < 1$ の観測データのみを尤度計算に用いたのは、 $\phi = -1$ または $\phi = 1$ である観測データの数が非常に多いためである。液相中における固相の成長を解析するとき、界面領域 $(-1 < \phi < 1)$ よりもバルク $(\phi = -1$ または $\phi = 1)$ の領域の方が非常に広い。そのため、 $\phi = -1$ または $\phi = 1$ である観測データを尤度計算に用いると計算コストが大きくなる。本研究では全ての格子点の観測データを用いて尤度計算をした場合についても推定を行ったが、推定精度に変化がないことを確認したため、上記のような尤度の計算方法を採用した。また、 $\boldsymbol{\Sigma}$ は分散共分散行列であり、その対角成分 σ_ϕ を今後観測ノイズの標準偏差と呼ぶこととする。異なる格子点の観測データのノイズは相互に影響しないので、分散共分散行列 $\boldsymbol{\Sigma}$ の対角成分以外は0である。式(3.1)によって尤度を計算し、その値に基づいてリサンプリングを行った後、各粒子の固液界面物性値を平均した値を時刻 t における推定値とした。その後、各粒子の固液界面物性値にシステム・ノイズを与えた。システム・ノイズは粒子を

サンプリング空間内でばらつかせる役割を持ったノイズである。リサンプリングでは、尤度の大きい粒子が高い確率で複製され、尤度の低い粒子は高い確率で破棄される。したがって、リサンプリング後には全く同じ粒子が複数存在する。これは粒子数が減少したことに等しい。そのままシミュレーションを再開し、同じフィルタリングの手順を繰り返すと、粒子数が減少し続けることになる。粒子フィルタでは多数の粒子（実現値）を用いて状態の確率密度分布を近似するため、十分な数の粒子がないと確率密度分布を近似できなくなり、適切な推定ができなくなる。この現象は粒子の退化と呼ばれている。したがって、本研究ではリサンプリング後に全く同じ粒子が複数存在することを防ぐために、リサンプリング後にシステム・ノイズを与えた。システム・ノイズは平均 0、標準偏差 σ_s の正規分布に従う乱数とした。 σ_s はそれぞれの固液界面物性値のその時刻における推定値の 10%とした。システム・ノイズの標準偏差 σ_s は大きすぎると推定精度は低くなる。しかし、小さすぎると十分に粒子をばらつかせることができなくなるため、粒子が狭い範囲に集中し、粒子による確率密度分布の適切な近似ができなくなる。したがって、システム・ノイズの標準偏差 σ_s は精度と粒子のばらつきのバランスを考慮して決定する必要がある。本研究では、20%では推定精度ができなくなり、5%では粒子が退化することが確認されたため、システム・ノイズの標準偏差 σ_s を各時刻の推定値の 10%として推定を行った。また、粒子フィルタの手順を解説する文献では、システム・ノイズがシミュレーションの時間発展方程式に組み込まれている場合が多い[7]。しかし、フェーズフィールド法では秩序変数の時間発展方程式に既にノイズが含まれているため、本研究ではシミュレーションを行う際にはシステム・ノイズを与えず、リサンプリング後に固液界面物性値へ与えることとした。

粒子フィルタによるパラメータ推定の精度は、フィルタリング間隔 t_f 、観測ノイズの標準偏差 σ_ϕ 、システム・ノイズの標準偏差 σ_s 、粒子数、各粒子に最初に固液界面物性値として与えた乱数の発生範囲 (γ_0^{ini} 、 ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} 、 β_0^{ini} 、 κ^{ini}) といったハイパーパラメータに影響を受ける。したがって、固液界面物性値の推定に適したハイパーパラメータの調査を行った。

3.3 結果

3.3.1 粒子フィルタによる固液界面物性値の推定

一辺が $X = 105.3 \text{ nm}$ である二次元のシステムを対象として、固液界面物性値の推定を試みた。このとき格子点数は 128^2 とした。これは分子動力学法で得られた観測データと同じ大きさのシステムである。タイムステップは $dt = 2 \text{ ps}$ とした。各粒子は凝固開始から 200 ps における観測データを初期状態としてシミュレーションを行った。これは、第 4 章で詳細に説明するが、分子動力学法によって固相の成長を解析した場合、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。そして、各粒子のシミュレーション開始から 100 ps 後、すなわち凝固開始から 300 ps 経過した時刻

から推定を開始した。そしてシミュレーション開始から 420 ps 後、すなわち凝固開始から 620 ps 後にシミュレーションを終了した。観測ノイズの標準偏差 σ_ϕ は 0.3、粒子数は 10000 とした。粒子フィルタでは粒子が多くなるほど推定精度が向上する。これは粒子が多いほど精度よく状態の確率密度分布を近似できるためである。しかし、粒子数が多いほど計算コストが大きくなる。ここでは、計算コストと推定精度のバランスが良い粒子数として 10000 を設定した。また、 $\gamma_0^{ini} = 0.6$ 、 $\varepsilon_1^{ini} = 0.2$ 、 $\varepsilon_2^{ini} = -0.02$ 、 $\beta_0^{ini} = 0.01$ 、 $\kappa^{ini} = 0.4$ とした。これは、純金属の固液界面エネルギーや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値がおおよそ網羅されるような範囲である。

全ての固液界面物性値を推定する前に、まず、界面カイネティック係数の平均値 β_0 の推定を試みた。このとき、他の固液界面物性値は既知とした。まず、推定の過程でどのように粒子のシミュレーション結果が変化しているのか Fig. 3.3 に示す。これは t_f を 20 ps とした場合である。観測データとある粒子 i のスナップショットの一部を時系列で示した。なお、凝固開始から 300 ps 以降では、代表して 350 ps と 600 ps におけるスナップショットのみを示している。粒子の初期状態は凝固開始から 200 ps 後の観測データと同じである。しかし、粒子 i のシミュレーションには β_0 に真の値とは異なる値（候補値）を用いているため、凝固開始から 300 ps 後（粒子のシミュレーション開始から 100 ps 後）には固相の大きさが観測データとは明らかに異なっている。次に、フィルタリングを行った後の粒子に着目すると、フィルタリング前よりも観測データに固相の大きさが近くなったことがわかる。その後、凝固開始から 350 ps および 600 ps の粒子 i の凝固組織の形状や大きさに着目すると、観測データと粒子 i の間に明らかな違いは見られないことがわかる。これは、この粒子 i が凝固開始から 300 ps におけるフィルタリングで更新された結果、観測データに十分近い凝固組織となり、その後観測データから大きく外れることなくフェーズフィールド法による凝固シミュレーションとフィルタリングを繰り返したということである。次に、Fig. 3.4(a)に推定の過程で粒子の β_0 がどのように変化したのかを示す。代表して 3 つの粒子の β_0 の時間変化を表したものである。横軸は凝固開始から経過した時間であり、200 ps の時点にあるプロットが粒子 1、2、3 のそれぞれに最初に与えられた β_0 である。それぞれの β_0 を用いて各粒子でフェーズフィールド法による凝固シミュレーションを行った。そして凝固開始から 300 ps 後からフィルタリングを開始した。つまり、300 ps において最初のフィルタリングを行ったが、このときそれぞれの粒子の β_0 が真の値に近づいたことがわかる。その後、粒子 1、2、3 の β_0 はすべて真の値からおおよそ 20 %以内の範囲で変化した。Fig. 3.4(b)に、このときの β_0 の推定値の時間変化を示す。推定値は各時刻のリサンプリング後の粒子の β_0 を平均したものである。300 ps 以降の推定値はすべての時刻で真の値との誤差が 4 %未満の値であり、良い収束性を示した。また、全ての時刻の推定値を平均したものを推定結果とした。推定結果の真の値との誤差は 0.9 %であり、高精度な推定を行うことができた。なお、誤差は平均平方二乗誤差で評価した。また、粒子フィルタは乱数を使用する方法であるため、同じ推定を複数回行っても結果は完全には一致しない。Fig. 3.4 (c)に、同条件で 5 回推定を行ったとき、どのよう

に推定値が時間変化したのかを示す。各時刻の5つの推定値の平均をプロット、最小値と最大値をエラーバーで表した。全ての推定値と真の値との誤差は3%以内であった。分子動力学法に基づいて β_0 を算出した場合、算出結果の平均値に対して算出結果のばらつきが $\pm 20\%$ ほどになる場合もある[8]。それと比較して、粒子フィルタによる β_0 の推定値は非常にばらつきが小さいと言える。また、5回の推定の結果を平均した値は、真の値との誤差が0.9%であった。

以上のことから、粒子フィルタによって β_0 を高精度に推定可能であることが示された。そこで、次に粒子フィルタによってすべての固液界面物性値の同時推定を試みた。Fig. 3.5に γ_0 、 β_0 、 ε_1 、 ε_2 、 κ を同時に推定した場合の推定値の時間変化を示す。このとき、 t_f は20 psとした。同条件で5回推定を行い、それぞれの各時刻の推定値をプロット、最小値と最大値をエラーバーで示した。横軸は観測データにおいて凝固開始から経過した時間である。各パラメータの推定値に着目すると、 β_0 と κ は推定値のばらつきが小さく、真の値のおよそ10%以内に収束した。 γ_0 の推定値は真の値へ近づくが収束せず、 ε_1 および ε_2 の推定値は収束しなかった。次に、Fig. 3.6に $t_f = 100$ psの場合の結果を示す。 $t_f = 100$ psの場合も、推定値の時間変化は $t_f = 20$ psの場合と同様の傾向であった。

次に、 t_f が推定結果に与える影響をより詳細に検証した。本研究で開発する固液界面物性値の推定方法では、凝固組織の時間変化を観測データとしてデータ同化に用いる。したがって、固液界面物性値の違いによって凝固組織の大きさや形が大きく変化するとき、高精度な推定が容易である。また、固液界面物性値の違いが小さい場合でも、より長時間の凝固をシミュレートすれば凝固組織の大きさや形の違いが大きくなる。したがって、フィルタリング間隔が長いほど、高精度な固液界面物性値の推定が可能となると考えられる。また、フィルタリングには計算コストがかかるため、フィルタリング間隔が長く、フィルタリングの回数が少ないほど低計算コストで推定を行うことができる。しかし、粒子フィルタなどのフィルタリングの方法は、推定を繰り返すことで推定値が真値に収束することが期待できる方法である。したがって、フィルタリングの回数が少なすぎると、推定値が真値に収束する前に推定が終了してしまう恐れがある。特に分子動力学法やフェーズフィールド法といったミクロスケールおよびメゾスケールの凝固組織の発展を対象としたシミュレーションは計算コストが高く、解析できる凝固時間が限られているため、フィルタリングの回数を保ちながらフィルタリング間隔 t_f を自由に大きくすることは困難である。したがって、分子動力学法やフェーズフィールド法で解析可能な長さの凝固時間の中で、固液界面物性値を精度よく推定できるようなフィルタリング間隔 t_f を調査することが重要である。

$t_f = 20$ ps, 50ps, 100psの場合について、凝固開始から320 ps以降（粒子のシミュレーション開始から120 ps後）の各時刻の推定値を全て平均して推定結果とし、推定結果と t_f の関係を調査した。このとき、 γ_0^{ini} 、 ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} 、 β_0^{ini} 、 κ^{ini} の値が推定結果に与える影響も同時に調査した。 γ_0^{ini} 、 ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} 、 β_0^{ini} 、 κ^{ini} は最初に固液界面物性値として粒子に与える乱数の発生範囲であるが、この値によって粒子の密度が変化する。粒子の密度が高いほど状

態の確率密度分布を精度よく近似できるので、推定精度が高くなると考えられる。また、最初に粒子に与えられた固液界面物性値の平均値が真の値から遠い場合、推定値が真の値へ収束するのに時間が必要となる可能性が考えられる。このとき、推定精度が低下する、推定値が収束する前に推定が終了する、などといった問題が生じる可能性も予想できる。更に、粒子フィルタが有効に作用しない場合、フィルタリングを行っても粒子が適切に更新されないため、 γ_0^{ini} 、 ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} 、 β_0^{ini} 、 κ^{ini} の値によって推定結果が大きく変化することが考えられる。したがって、これらの値が推定精度に及ぼす影響についても調査を行う必要がある。

まず、全ての固液界面物性値を同時に推定する場合について調査を行った。結果を Fig. 3.7 に示す。同条件で 5 回推定を行い、推定結果の平均値をプロット、最小値と最大値をエラーバーで示した。 β_0 および κ は推定の頻度および β_0^{ini} 、 κ^{ini} の大きさに関わらず、高精度に推定できた。 γ_0 は $\gamma_0^{ini} = 0.2$ の場合には推定頻度が低いほど推定結果が真の値へ近づく傾向があった。また、 ε_1 および ε_2 は ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} によって推定結果が大きく異なっているため、推定できなかったとみなすことができる。

以上の結果で着目すべき点は、 β_0 および κ は粒子フィルタによって推定値が直ちに収束し、更に推定条件を変更しても常に高精度に推定が可能であるという点である。これは、固相の大きさや形態の変化が β_0 および κ に敏感に影響を受けるためであると考えられる。そこで、 γ_0 、 ε_1 、 ε_2 の推定精度を向上させることを狙いとして、 β_0 と κ の値が既知であるとして推定を行った。一般に粒子フィルタによるパラメータ推定では、推定するパラメータが少ないほど高精度な推定が期待できる。したがって、 β_0 と κ を既知とし、残りの 3 つのパラメータを同時推定することで、すべての固液界面物性値の推定精度の向上が期待できる。

β_0 と κ の値を既知として、 γ_0 、 ε_1 、 ε_2 の 3 つのパラメータを同時に推定した結果を Fig. 3.8 に示す。プロットで示した推定値の平均値は、全ての固液界面物性値を同時に推定した場合と比較して、 γ_0 、 ε_1 、 ε_2 の全てで真の値へ近づき、エラーバーも短くなった。エラーバーは推定結果の最小値と最大値を示しているため、短いほど推定値のばらつきが小さいことを表している。したがって、同時推定するパラメータを段階的に少なくすることで、推定精度の向上が可能であることが示された。このように、まず β_0 と κ の推定結果を決定し、その後他のパラメータを推定することで全てのパラメータの推定精度を向上させる方法を、本研究では多段階推定と呼ぶこととする。

また、 γ_0 は t_f が大きいほど推定精度が向上した。これは、ある時刻における推定から次の推定までの時間が長いほど、固相の大きさの変化が大きくなるためであると考えられる。固相の大きさの変化が大きくなれば、固相の大きさや形状の違いがより小さな固液界面エネルギーの違いでも大きく現れるようになる。このとき、真の値から外れた粒子がリサンプリングの段階で破棄されやすくなったため、推定精度が向上したと考えられる。また、Fig. 3.7 に示した β_0 と κ の推定結果と比較すると、 γ_0 の推定精度は β_0 や κ よりも t_f の影響を受けやすいことがわかる。また、 γ_0^{ini} の影響は見られなかった。このときエラーバーの先端の値とプロ

ットの値との誤差は3%未満であった。現在分子動力学法に基づく固液界面エネルギーの算出方法では、Capillary fluctuation method が代表的な手法である。Capillary fluctuation method では算出結果のばらつきが±10%以内であることが多い[9,10]。したがって、この多段階推定によって得られる γ_0 の推定結果は Capillary fluctuation method よりもばらつきが小さいと言える。また、 $t_f = 50\text{ps}, 100\text{ps}$ のとき、推定結果と真の値の誤差は10%未満であった。

また、 ε_1 は ε_1^{ini} の値が小さいほど推定精度が向上する傾向があった。これは粒子の密度が高くなるためであると考えられる。また、Capillary fluctuation method による ε_1 の算出結果では、算出結果のばらつきが±10%以内であることもあれば、±10~40%の誤差が生じることも多々ある[9,10]。多段階推定によって得られた ε_1 のばらつきの大きさは、 $t_f = 50\text{ps}, 100\text{ps}$ のときおよそ10%以下であり、Capillary fluctuation method による推定よりも小さいばらつきで推定が可能であった。また、 ε_2 は t_f が大きいとき推定精度が向上する傾向にあった。

次に、 ε_2 の推定精度を更に向上させることを目的として、 ε_2 以外の固液界面物性値を既知として ε_2 の単独推定を行った。 ε_2 を単独で推定した結果を Fig. 3.9 に示す。推定結果は t_f に依存しなかった。一方で、 ε_2^{ini} によって変化した。 ε_2 のみを推定した場合の推定値の時間変化を Fig. 3.10 に示す。(a)は $t_f = 20\text{ps}$ 、(b)は $t_f = 100\text{ps}$ の場合である。プロットは各時刻の推定値、エラーバーは粒子の分布の標準偏差である。推定値の時間変化の傾向は、 $t_f = 20\text{ps}$ と $t_f = 100\text{ps}$ の場合で同じであった。 $\varepsilon_2^{ini} = -0.01$ である場合、推定値はほとんど時間変化しなかった。 ε_2^{ini} が-0.02 および-0.03 の場合には、推定値は真の値へ近づいていく様子が見られたが、真の値へ収束するには至らず、最終的には $\varepsilon_2^{ini} = -0.01$ である場合の推定値と近い値まで到達した。これは、粒子フィルタによって ε_2 が-0.01 程度よりも絶対値が大きい値ではないことはわかるが、0 から-0.01 程度までの範囲の中では ε_2 の値による固相の大きさや形状の違いが区別できないということの意味する。ここで、Capillary fluctuation method による ε_2 の算出結果では、±30~100%のばらつきが生じることが多々ある[9,10]。これは、 ε_2 が非常に小さい値であり、算出が難しいためである。一方、本研究で得られた推定結果のばらつきは10~20%程度であった。

以上より、固液界面物性値は、同時に推定するパラメータを段階的に減らしていく多段階推定によって、粒子フィルタに基づいて推定できることが示された。これは、固液界面物性値の種類によって推定の容易さが異なるためである。固相の大きさや形態がそのパラメータに影響を受けやすいほど高精度な推定が容易である。本研究では界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータがどのような条件でも高精度に推定可能であることが示された。更に、界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータの推定結果が得られた後、その他のパラメータを推定することで、その他のパラメータの推定精度が向上することが明らかとなった。特に固液界面エネルギーの平均値と異方性パラメータ ε_1 は高精度な推定が可能であった。このように、粒子フィルタに基づいた多段階推定によって、固液界面物性値を単一の分子動力学計算から推定可能であることが示された。

3.3.2 システムサイズおよび格子点間隔が推定精度に与える影響

本研究では分子動力学法による観測データには、システムの一辺の長さが $X = 105.3 \text{ nm}$ 、格子点数が 128^2 であるものを用いた。ただし、今後大規模計算技術が更に発展し、より大規模な分子動力学法による凝固シミュレーションが容易となることが予想される。したがって、より大きなシステムにおける固液界面物性値の推定について、適切な推定条件を検討することは重要な課題といえる。そのため、システムサイズが推定精度に及ぼす影響を調査した。また、分子動力学法は非常に計算コストの高い計算方法である。また、粒子フィルタは多数のシミュレーションを同時に行うため、各粒子におけるシミュレーションの計算コストが増加すると全体の計算コストが著しく大きくなる。そのため、計算の格子点数は少ない方が望ましい。したがって、効率の良い固液界面物性値の推定を行うために、事前にシステムサイズに加えて格子点間隔が推定に及ぼす影響を調査することが重要である。

まずシステムサイズの影響について調査した。 $X = 128 \text{ nm}$ 、 256 nm 、 512 nm である3通りのシステムについて、固液界面物性値の推定を行った。格子点間隔は $dx = 2 \text{ nm}$ 、タイムステップは $dt = 10 \text{ ps}$ とした。 $X = 128 \text{ nm}$ である場合には凝固開始から 1500 ps 、 $X = 256 \text{ nm}$ は 3500 ps 、 $X = 512 \text{ nm}$ は 7000 ps まで推定を行った。そして、それぞれ 800 ps 、 1800 ps 、 3500 ps 以降の各時刻の推定値を平均したものをその推定の推定結果とした。粒子数は 10000 、観測ノイズの標準偏差 σ_ϕ は 0.3 または 0.5 とした。

まず、固液界面物性値を全て同時に推定する場合について、システムサイズの影響を調査した結果を Fig. 3.11 に示す。推定は 20 ps 毎に行った。同条件で5回ずつ推定を行い、推定結果の平均値をプロット、最小値と最大値をエラーバーで示した。 β_0 、 γ_0 、 κ はシステムサイズに関わらず高精度に推定を行うことができた。一方、 ε_1 は高精度な推定ができず、 ε_2 はシステムサイズが大きくなると推定結果が真の値に近づく傾向が見られたが、いずれの場合も誤差が大きく、高精度に推定することはできなかった。ここで、3.3.1 節では、分子動力学法による観測データと同じ大きさのシステムにおいて、全ての固液界面物性値を推定したとき、 β_0 および κ の高精度な推定が可能であることが示された。Fig. 3.11 に示した結果より、システムサイズがより大きい場合にも β_0 および κ は高精度に推定可能であり、それに加えて、 γ_0 も精度よく推定可能であることが示された。

次に、多段階推定の二段階目として、 ε_1 および ε_2 以外の固液界面物性値を既知とした場合についてシステムサイズの影響を調査した。結果を Fig. 3.12 に示す。 ε_1 および ε_2 において、多段階推定の一段階目よりも推定精度が向上した。更に ε_2 の推定精度を向上させるため、多段階推定の三段階目として ε_2 のみを推定した場合の結果を Fig. 3.13 に示す。 ε_2 のみを推定する場合に限って $X = 1024 \text{ nm}$ の場合についても推定を行った。また、 $X = 1024 \text{ nm}$ の場合のみ粒子数を 2000 、推定を行う時間間隔を 200 ps とした。 ε_2 は $X = 1024 \text{ nm}$ のとき、最も高精度に推定することができた。

以上より、システムサイズが大きい場合でも、多段階推定によって固液界面物性値の推定

精度が向上することが示された。また、システムサイズが小さい場合は固液界面物性値を全て推定したとき、 β_0 および κ が推定可能であったのに対して、システムサイズが大きい場合には γ_0 、 β_0 、 κ を同時に推定可能であった。

次に、格子点間隔 dx が推定精度に与える影響を調査した。推定を行う時間間隔は 20 ps、システムの一辺の長さ X は 512 nm とし、 $dx = 2$ nm、4 nm、8 nm である場合について推定を行った。まず全ての固液界面物性値を同時に推定する場合について、格子点間隔が推定精度に与える影響を Fig. 3.14 に示す。 β_0 は dx が小さいほどわずかに推定結果の精度が向上する傾向にあった。これは dx が小さいほど固相の形状を精度よく表現できるためであると考えられる。 κ の推定結果は dx に依存しなかった。 ϵ_1 および ϵ_2 は格子点間隔に関わらず誤差が大きく、高精度に推定することはできなかった。一方、 γ_0 は dx が大きくなるほど高精度な推定をすることができた。この理由については今後更なる調査が必要である。

次に、多段階推定の手順に従って、 ϵ_1 および ϵ_2 を同時に推定した場合の結果を Fig. 3.15 に示す。 ϵ_1 、 ϵ_2 とともに格子点間隔が小さいとき、精度が向上する傾向にあった。更に、 ϵ_2 のみを推定した結果を Fig. 3.16 に示す。(a)は $X = 512$ nm の場合、(b)は $X = 1024$ nm の場合の結果である。 $X = 1024$ nm の場合のみ、粒子数は 2000、推定を行う時間間隔は 200 ps とした。 $X = 512$ nm の場合、 ϵ_1 と同時に推定した場合と精度は変わらないが、 $X = 1024$ nm の場合では格子点間隔に関わらず高精度に推定することができた。

また、 $X = 105.3$ nm の場合についても同様の調査を行った。 $dx = 0.8$ nm、2 nm の場合について推定を行い、その結果を比較した。推定は 20 ps 毎とし、ここでも多段階推定を行った。Fig. 3.17、Fig. 3.18、Fig. 3.19 に結果を示す。多段階推定の手順に従って、Fig. 3.17 は全ての固液界面物性値を同時に推定した場合、Fig. 3.18 は ϵ_1 と ϵ_2 を同時に推定した場合、Fig. 3.19 は ϵ_2 を推定した場合の結果である。全ての固液界面物性値を推定した場合、 β_0 と κ の推定結果は格子点間隔に依存しなかった。また、 $X = 512$ nm の場合と同じく、 γ_0 は、格子点間隔が大きくなるほど推定精度が向上した。 ϵ_1 と ϵ_2 を同時に推定した場合には、 ϵ_1 および ϵ_1 の推定結果は格子点間隔に依存しなかった。これは ϵ_2 のみを推定した場合も同様であった。

以上より、全ての固液界面物性値はシステムサイズが大きいほど高精度に推定できることが示された。一方、 γ_0 は格子点間隔が大きいほど推定精度が高くなる傾向を示した。また、 ϵ_2 は一辺の大きさが 1024 nm のとき最も高精度に推定できた。また、システムサイズや格子点間隔がどのような大きさであっても、多段階推定によって単一の分子動力学計算から固液界面物性値を推定可能であることが示された。

3.4 結言

双子実験によって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検証した。その結果、同時に推定する物性値を段階的に減らしていく方法によって全ての固液界面物性値を推定できることが明らかとなった。本研究ではこれを多段階推定と呼ぶこととした。ま

た、システムサイズを固定したとき、格子点間隔が小さいほど精度よく固相の形状を表現できるため、推定精度が向上するように考えられるが、固液界面エネルギーの平均値は格子点間隔が大きいほど推定精度が向上した。また、システムサイズや格子点間隔の大きさに関わらず、固液界面物性値の推定には多段階推定が有効であった。以上より、単一の分子動力学計算から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。また、多段階推定によって過冷状態における固液界面物性値を推定可能であった。これは従来の方法にはない多段階推定の特長である。

参考文献

- [1] K. Sasaki, A. Yamanaka, S. Ito and H. Nagao, *Computational Materials Science*, 141 (2018) 141.
- [2] A. Yamanaka, Y. Maeda, K. Sasaki, *Materials and Design*, 165 (2019) 107577.
- [3] S. Ito, H. Nagao, A. Yamanaka, Y. Tsukada, T. Koyama, M. Kano, and J. Inoue, *Physical Review E*, 94 (2016) 043307.
- [4] 加藤博司、大林茂、橋本敦、吉沢徹、上野玄太、樋口知之、ながれ、31 (2012) 165.
- [5] S.K.D. Nath, Y. Shibuta, M. Ohno, T. Takaki and T. Mohri, *ISIJ International*, Vol. 57 No. 10 (2017) 1774.
- [6] E. Asadi, M.A. Zaeem, S. Nouranian and M. I. Baskes, *Acta Materialia*, 86 (2015) 169.
- [7] 樋口知之：データ同化入門一次世代のシミュレーション技術一，朝倉書店(2011)
- [8] Y. Watanabe, Y. Shibuta and T. Suzuki, *ISIJ International*, 50 (2010) 1158.
- [9] J.J. Hoyt, M. Asta and A. Karma, *Materials Science and Engineering R*, 41 (2003) 121.
- [10] J. Liu, R.L. Davidchack and H.B. Dong, *Computational Materials Science*, 74 (2013) 92.

表 3.1 観測データ作成のための固液界面物性値の真の値

パラメータ	値
固液界面エネルギー, γ_0	0.17 Jm ⁻² [5]
異方性パラメータ, ε_1	0.057 [5]
異方性パラメータ, ε_2	-0.0037 [5]
界面カイネティック係数, β_0	9.0 × 10 ⁻³ sm ⁻¹ [6]
異方性パラメータ, κ	0.35

表 3.2 フェーズフィールド法による凝固シミュレーションの入力パラメータ

パラメータ	値
比熱, C_p	3.38 × 10 ⁶ JK ⁻¹ m ⁻³
潜熱, L	1.09 × 10 ⁹ Jm ⁻³
融点, T_m	870 K

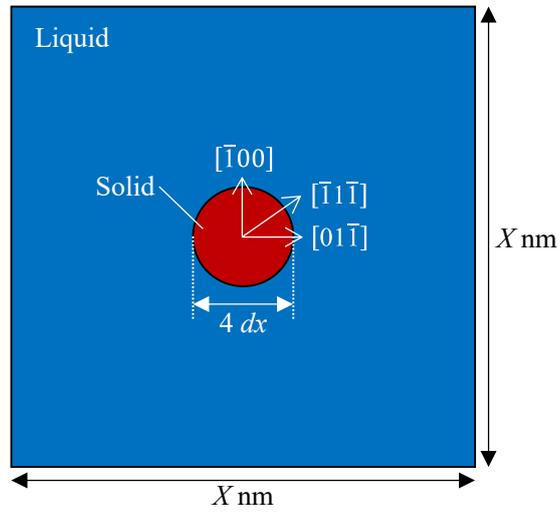


Fig. 3.1 The schematic illustration of initial condition for phase field simulation for solidification of a pure metal.

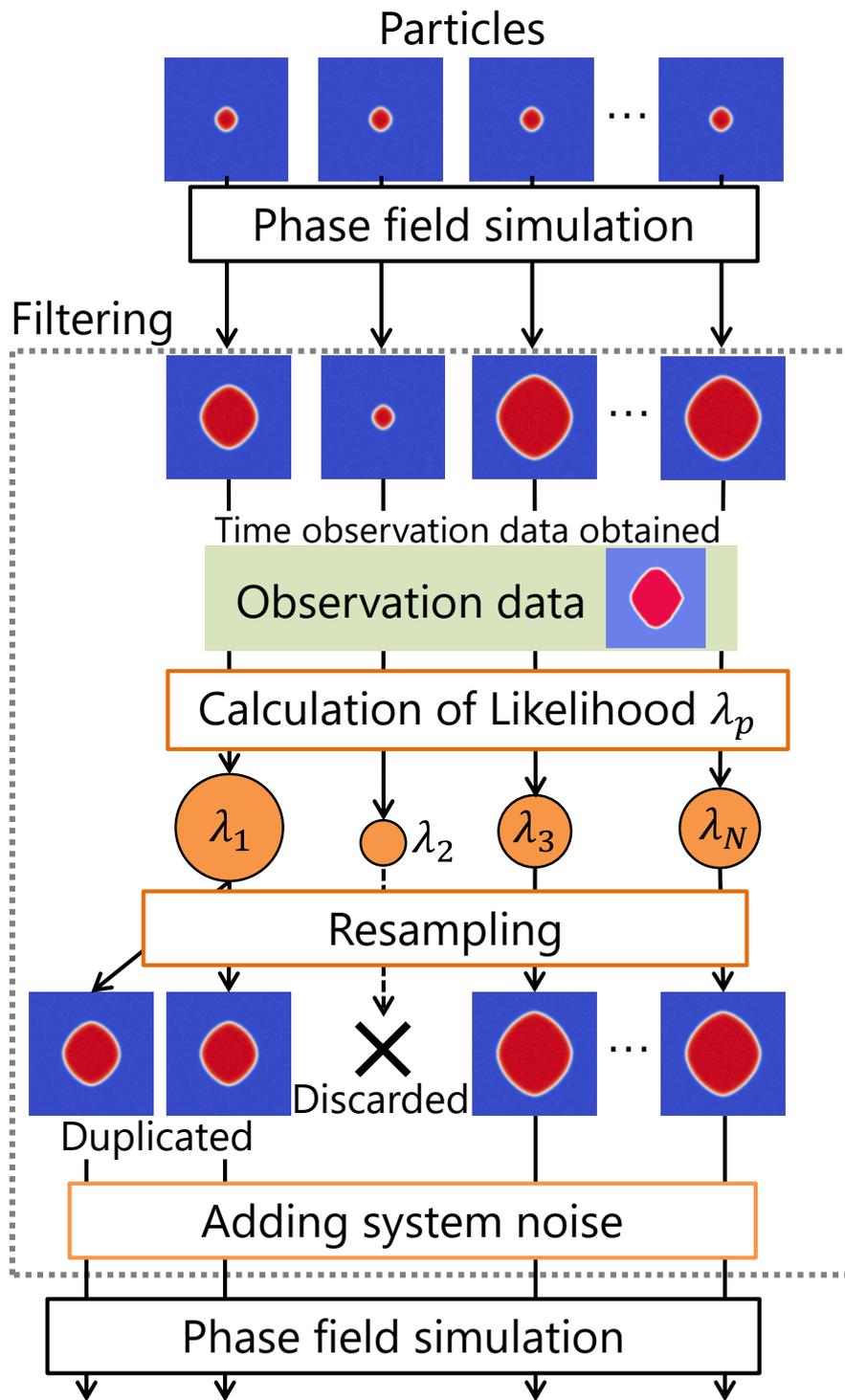


Fig. 3.2 Schematic illustration of procedure of particle filter.

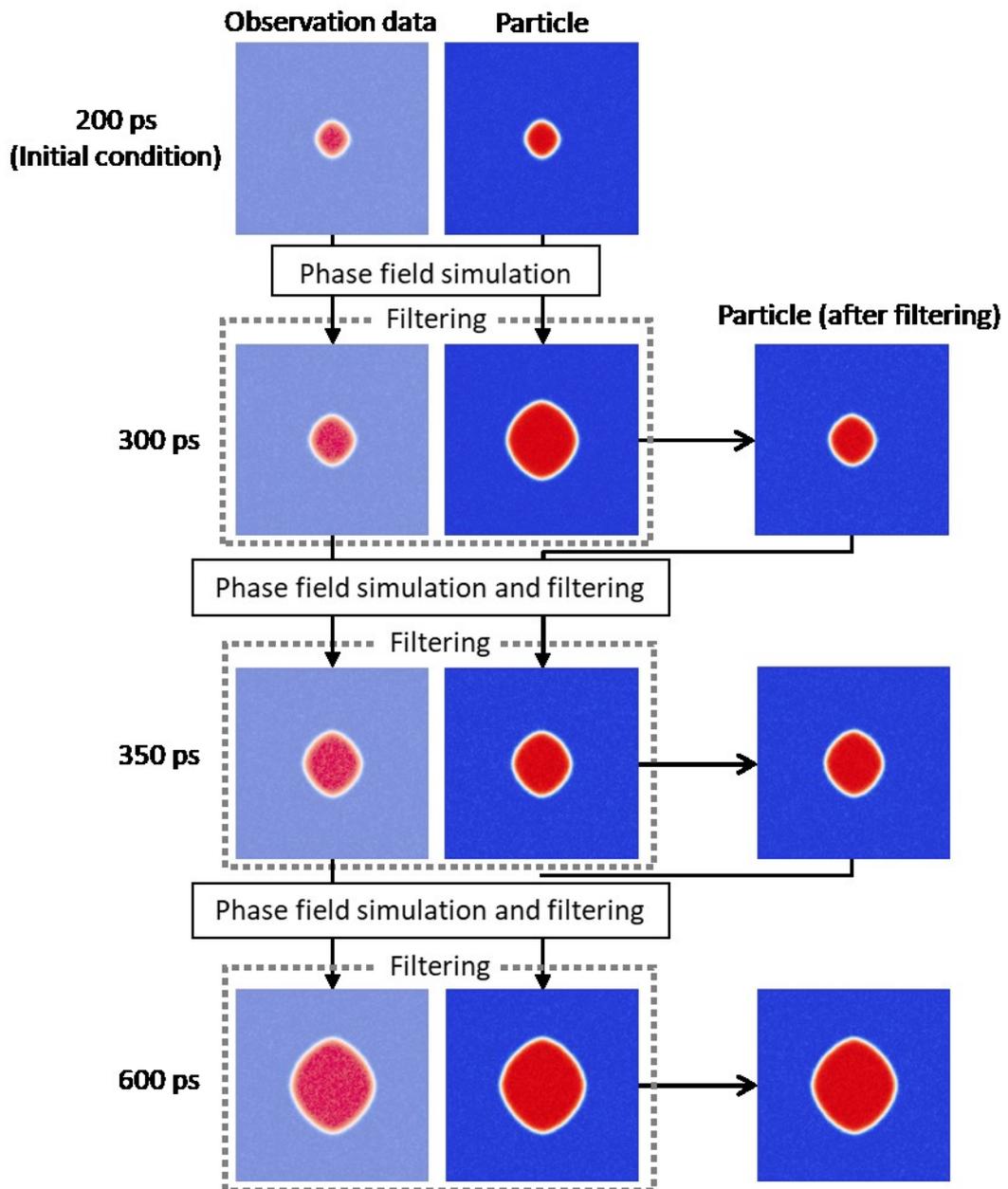


Fig. 3.3 Snapshots of observation data and particle i . Particle i was revised by filtering.

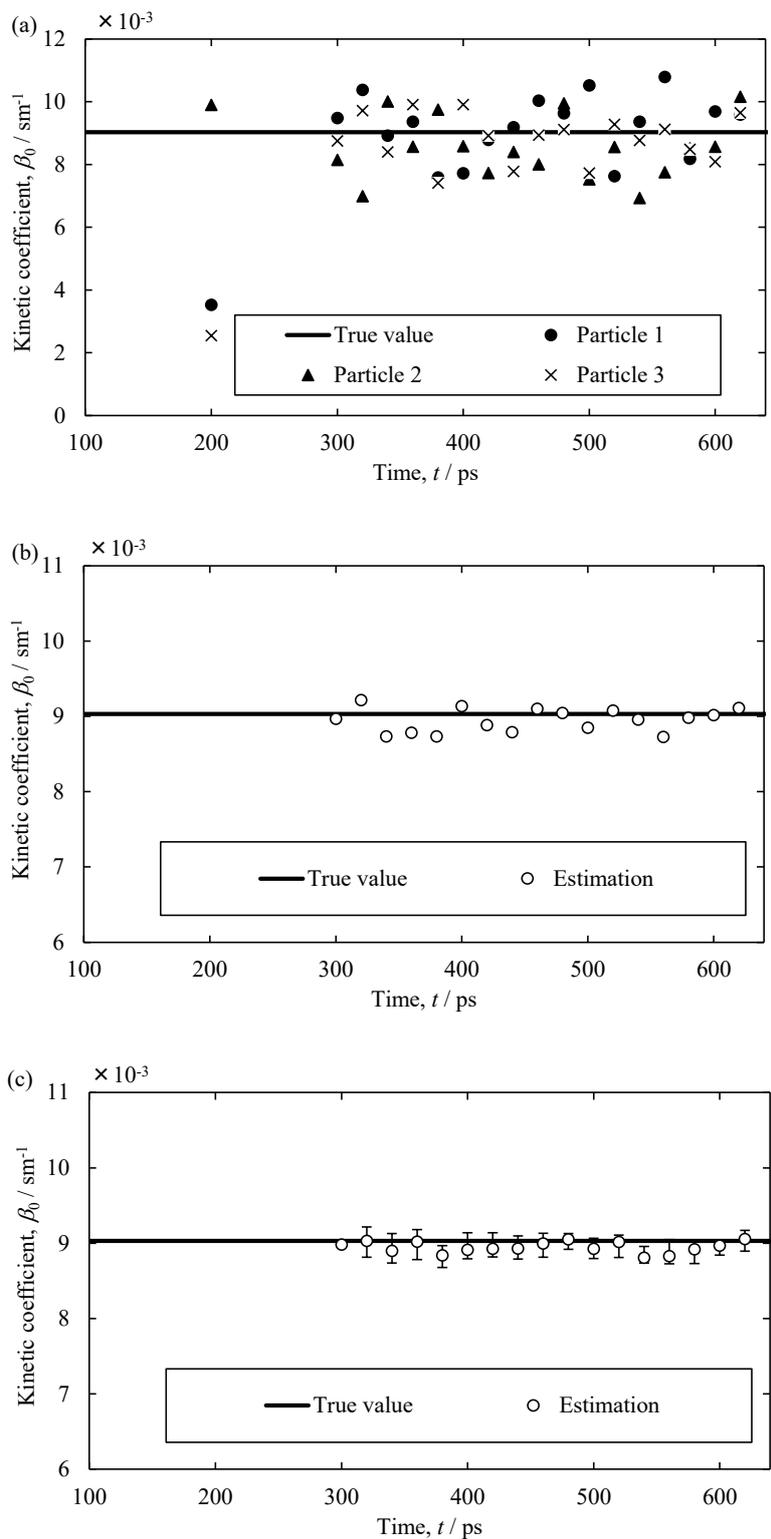
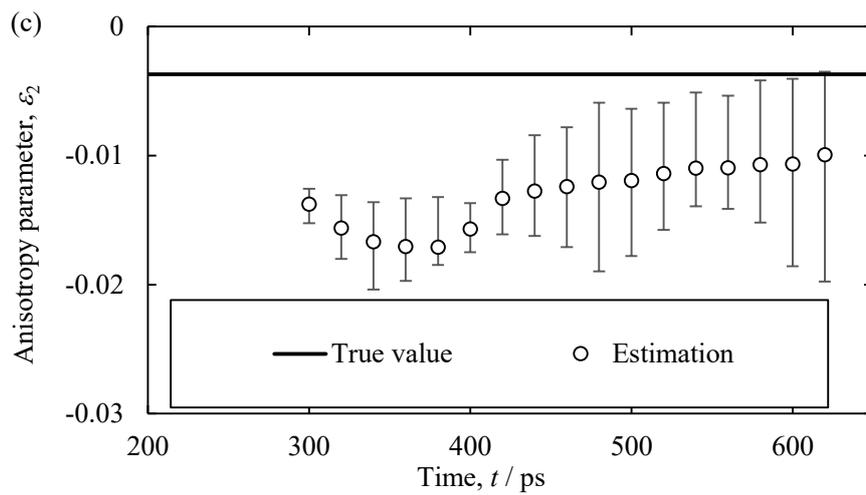
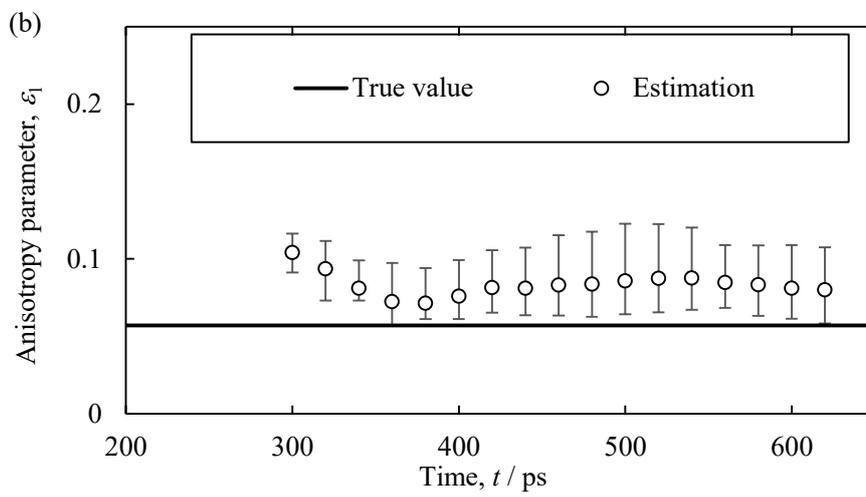
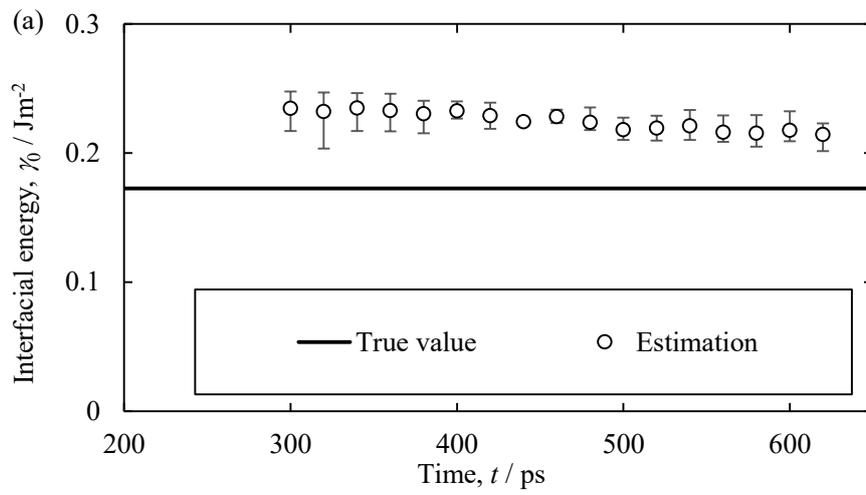


Fig. 3.4 (a) Time dependence of average of kinetic coefficient of some particles, (b) time dependence of estimated value of average of kinetic coefficient, (c) time dependence of averaged estimation values of five times estimation when the other interfacial properties were already-known.



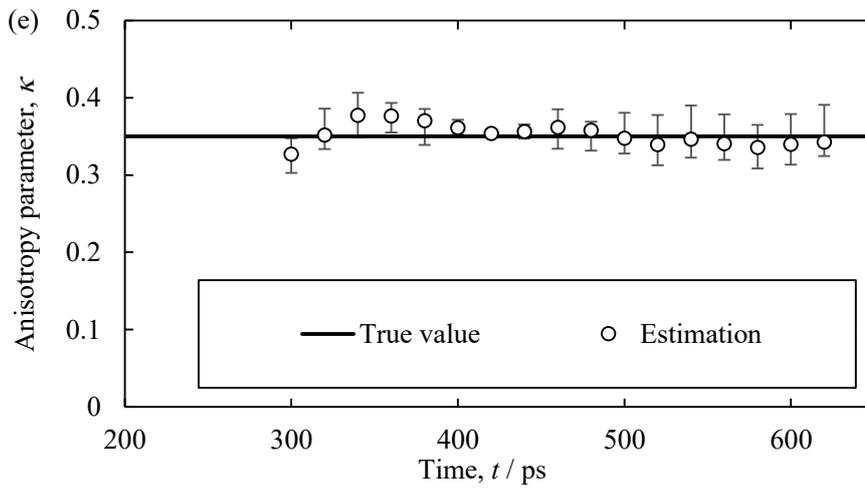
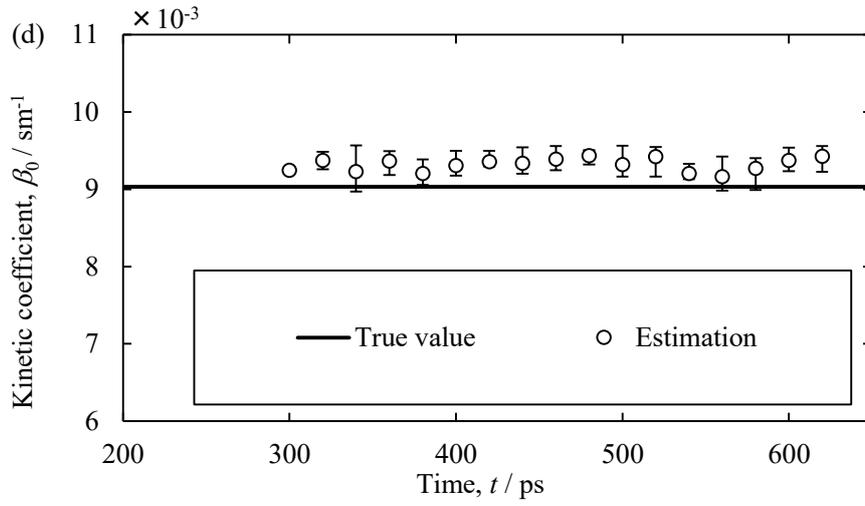
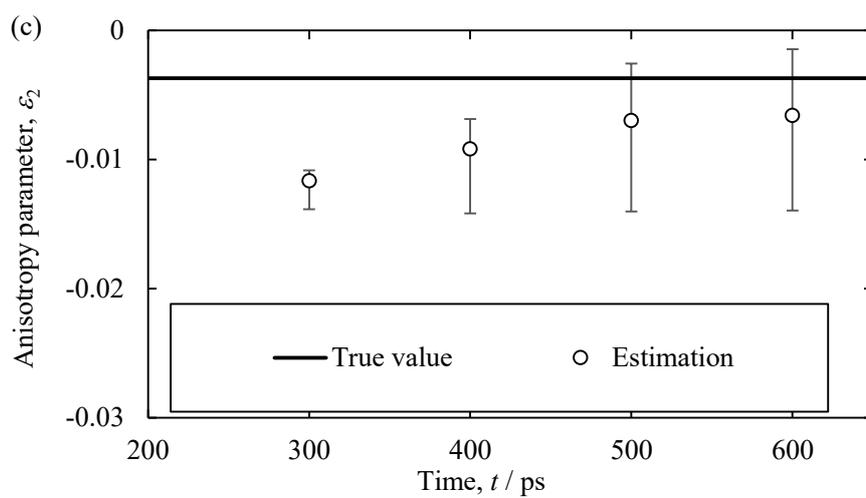
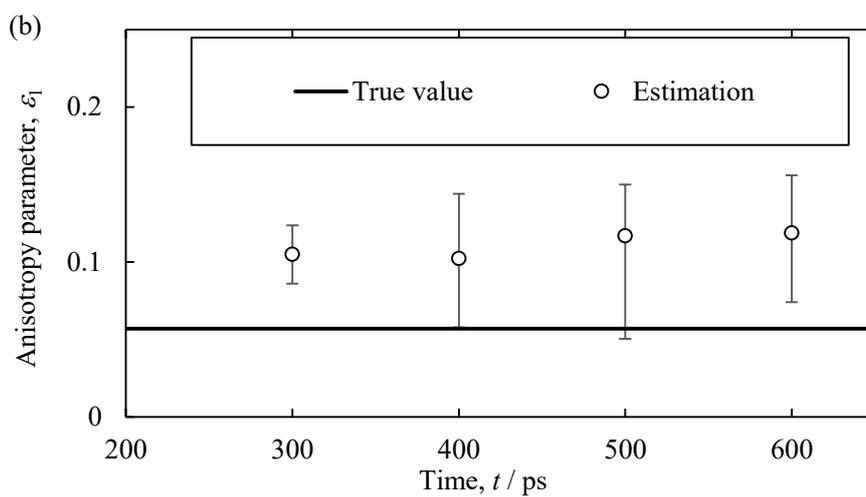
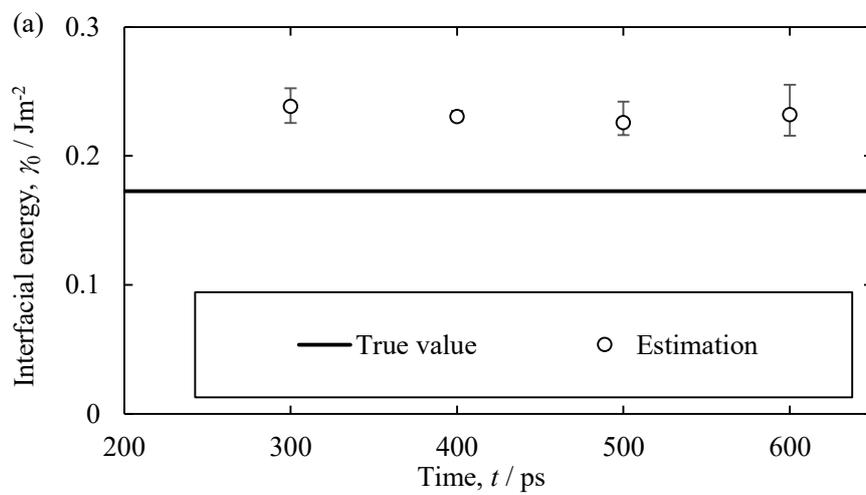


Fig. 3.5 Time dependence of estimated value of (a) average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 , (d) average of kinetic coefficient and (e) anisotropy parameter κ when estimation interval was 20 ps.



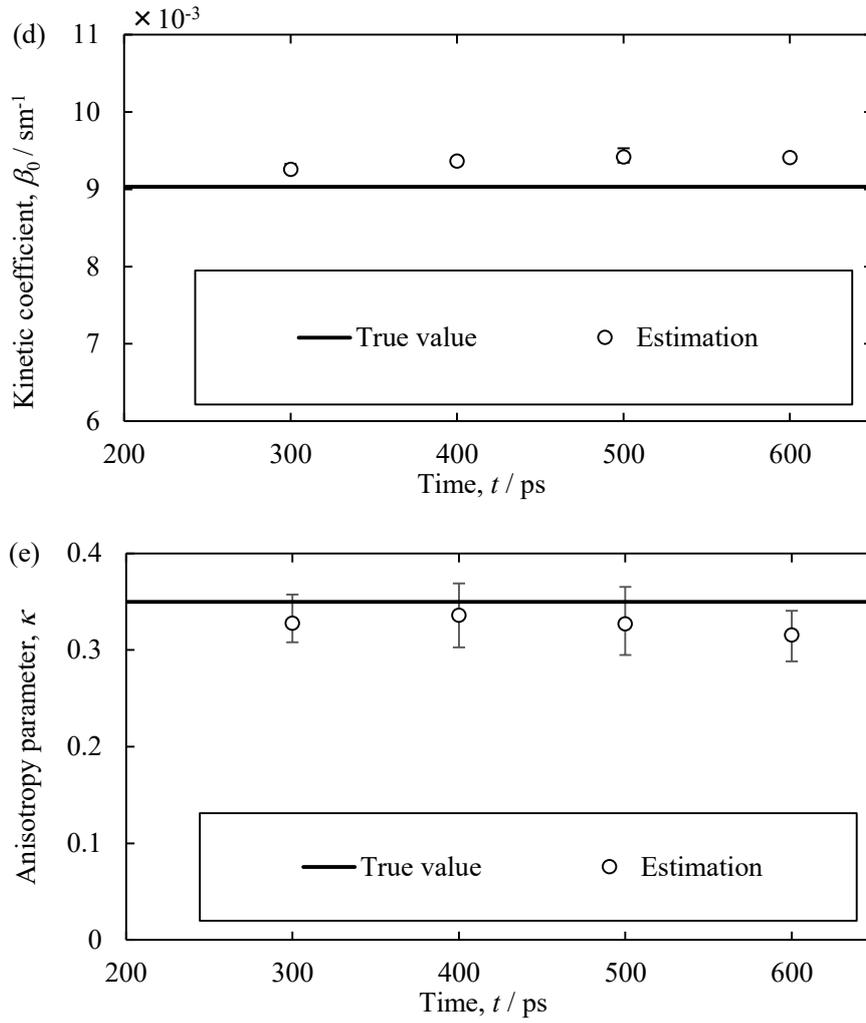
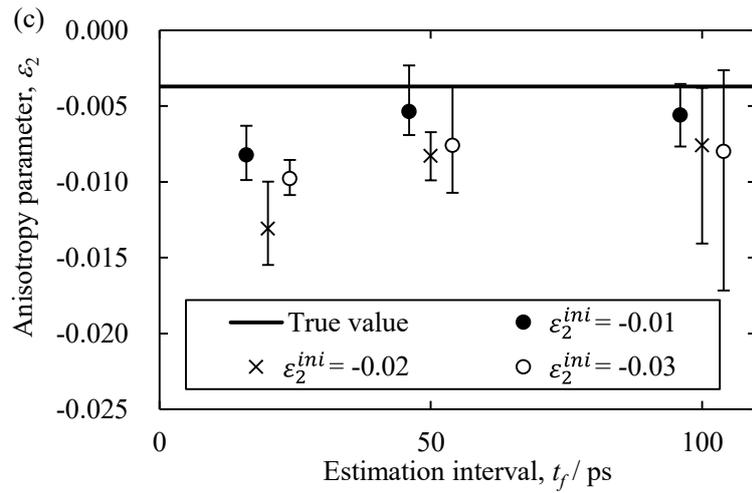
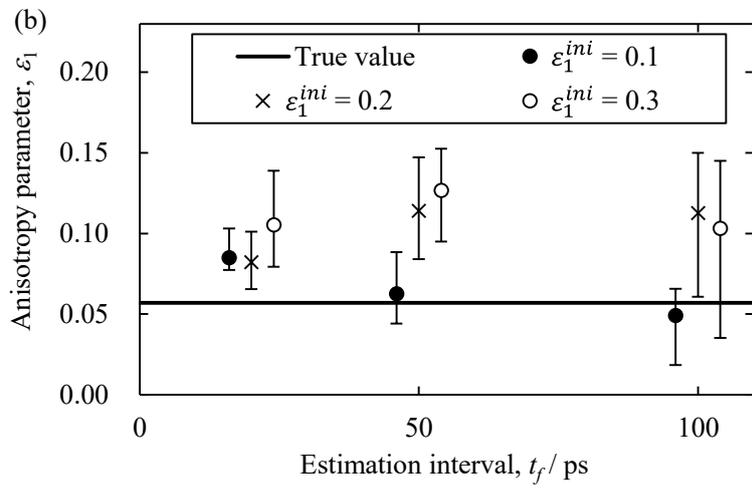
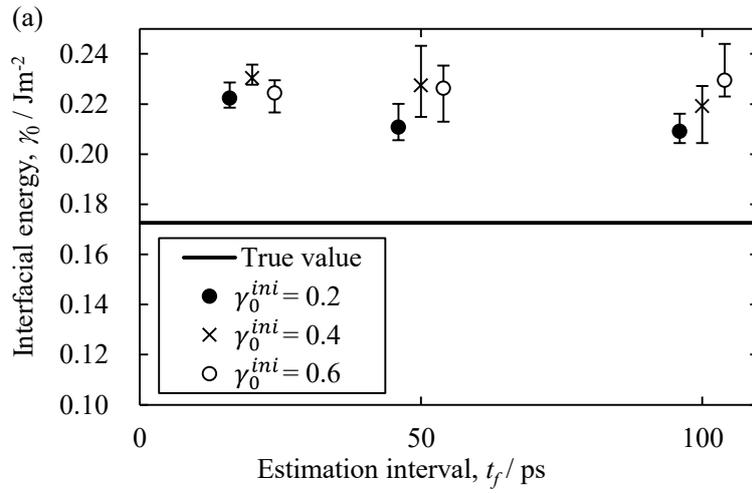


Fig. 3.6 Time dependence of estimated value of (a) average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 , (d) average of kinetic coefficient and (e) anisotropy parameter of kinetic coefficient when estimation interval was 100 ps.



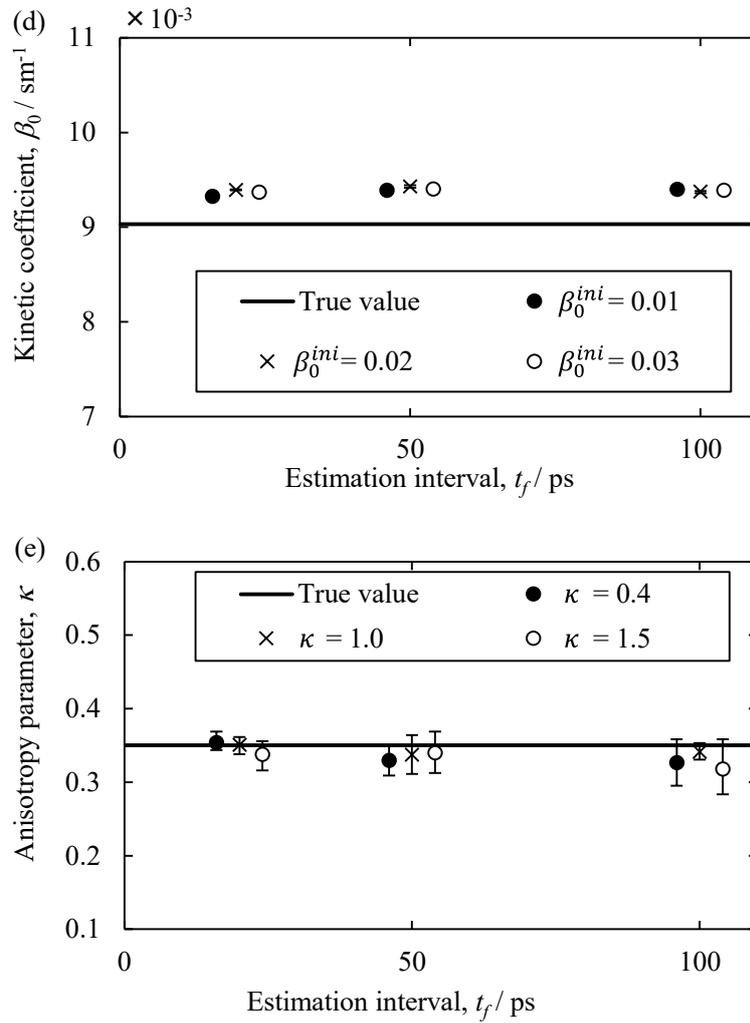


Fig. 3.7 Dependence of estimation results of all interfacial properties on estimation interval. (a) Average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 , (d) average of kinetic coefficient and (e) anisotropy parameter of kinetic coefficient.

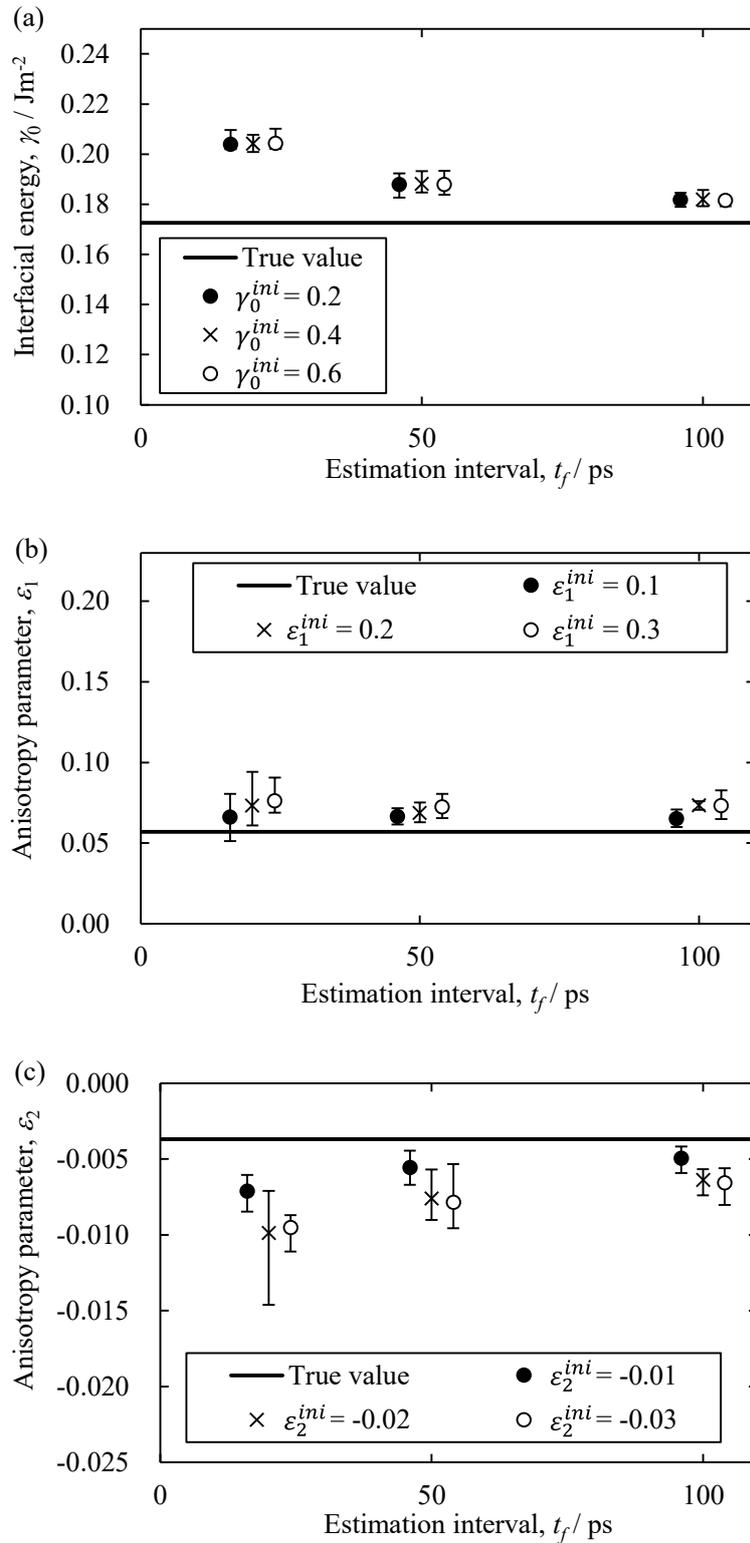


Fig. 3.8 Dependence of estimation accuracy of average and anisotropy parameter of interfacial energy on estimation interval when average and anisotropy parameter of kinetic coefficient were already known. (a) Average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 .

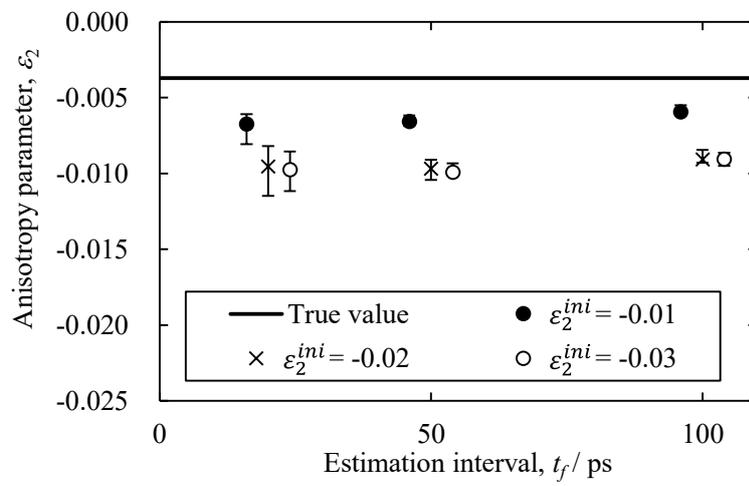


Fig. 3.9 Dependence of estimation accuracy of anisotropy parameter ϵ_2 on estimation interval when the other interfacial properties were already known.

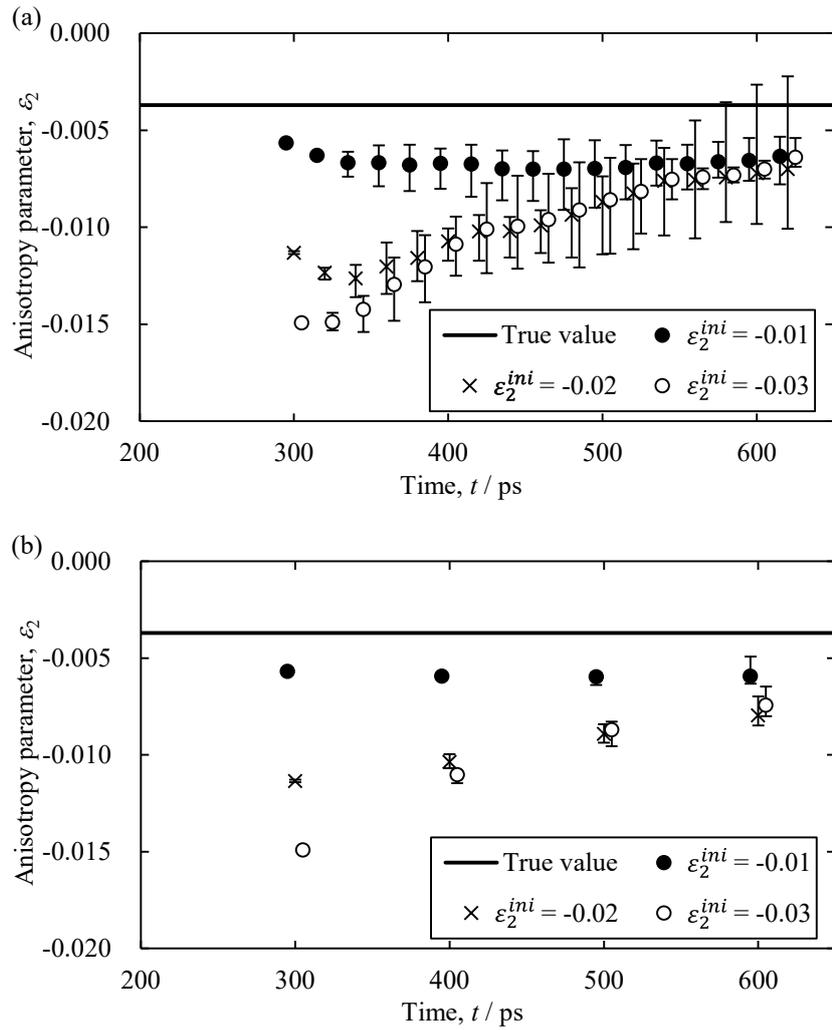
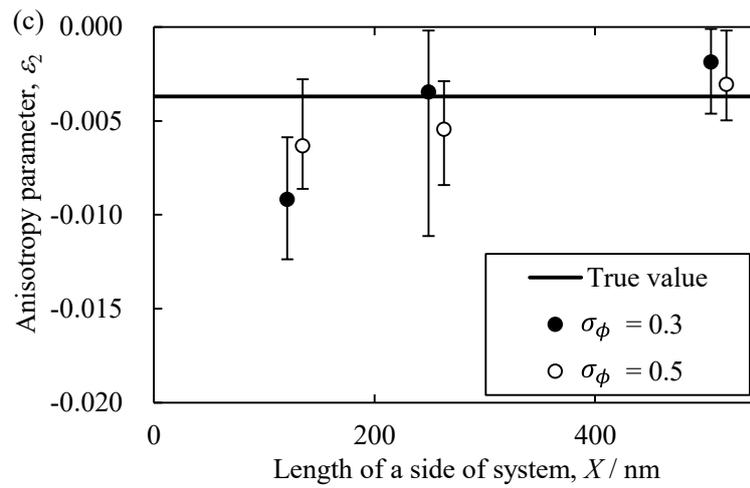
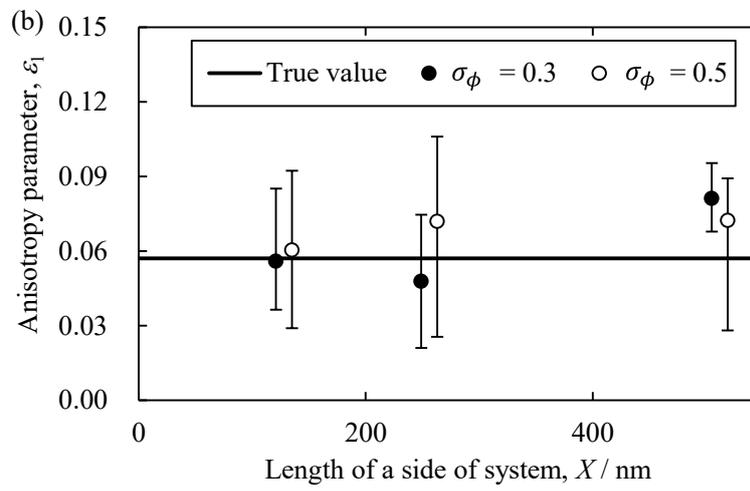
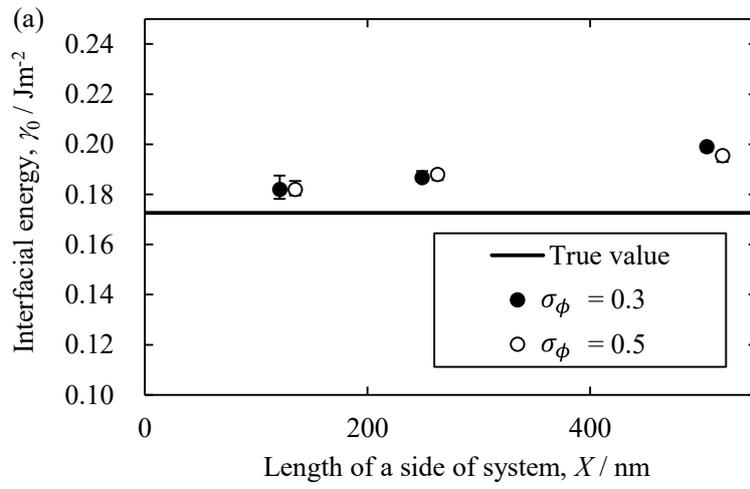


Fig. 3.10 Time dependence of estimated value of ε_2 when the other interfacial properties were already known when estimation interval was (a) 20ps, (b) 100ps.



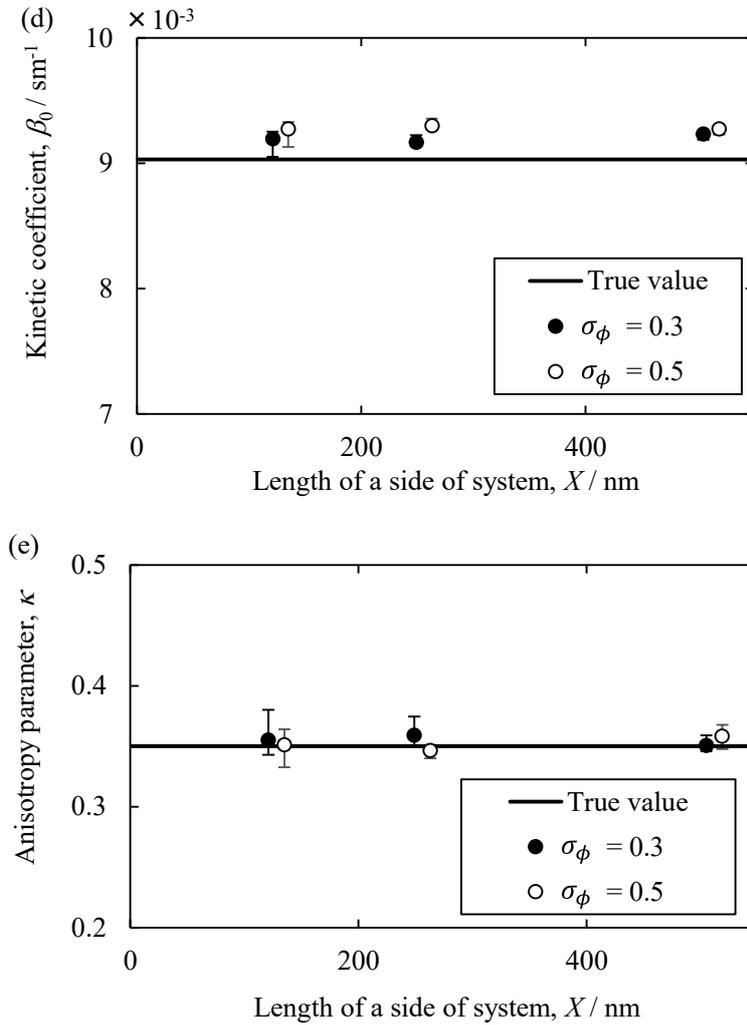


Fig. 3.11 Dependence of estimation accuracy of all interfacial properties on system size. (a) Average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 , (d) average of kinetic coefficient and (e) anisotropy parameter of kinetic coefficient.

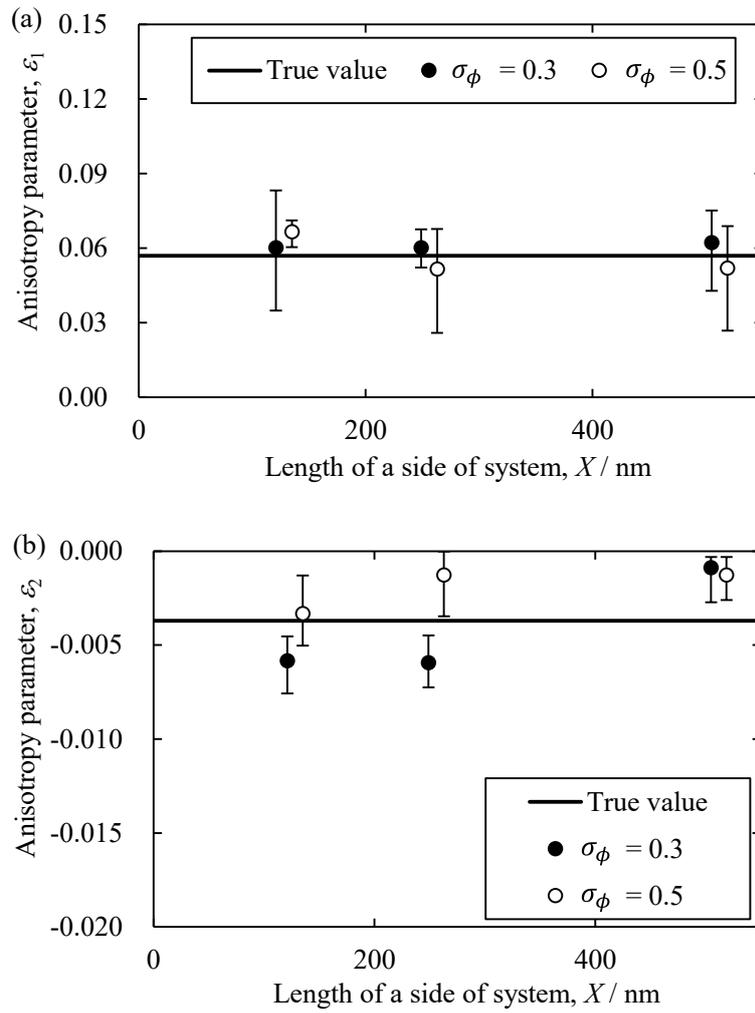


Fig. 3.12 Dependence of estimation results of anisotropy parameters of interfacial energy on system size when the other interfacial properties were already known. (a) Anisotropy parameter ε_1 and (b) ε_2 .

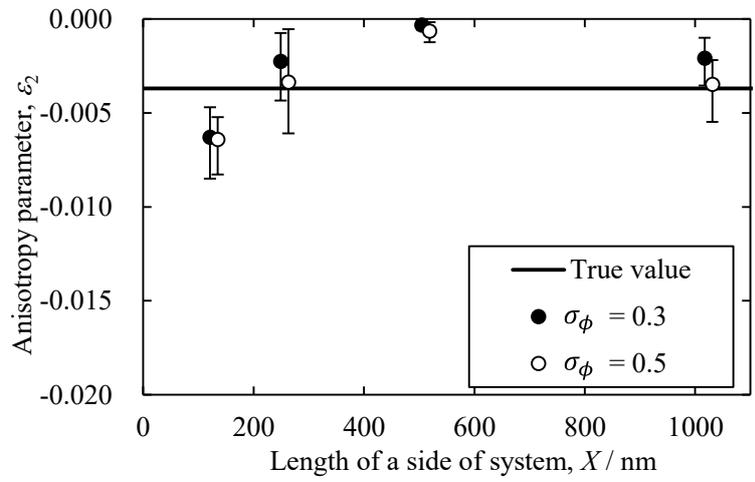
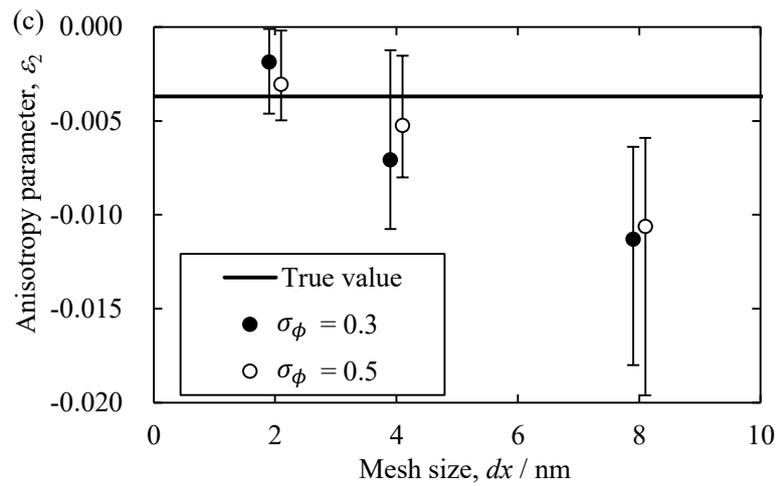
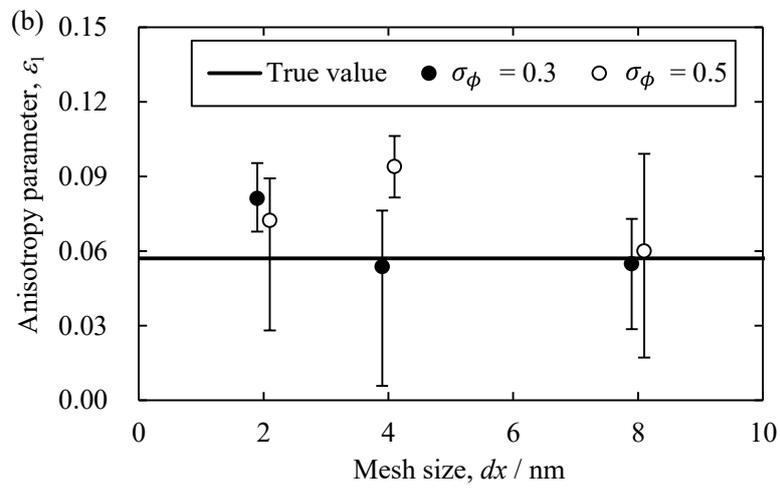
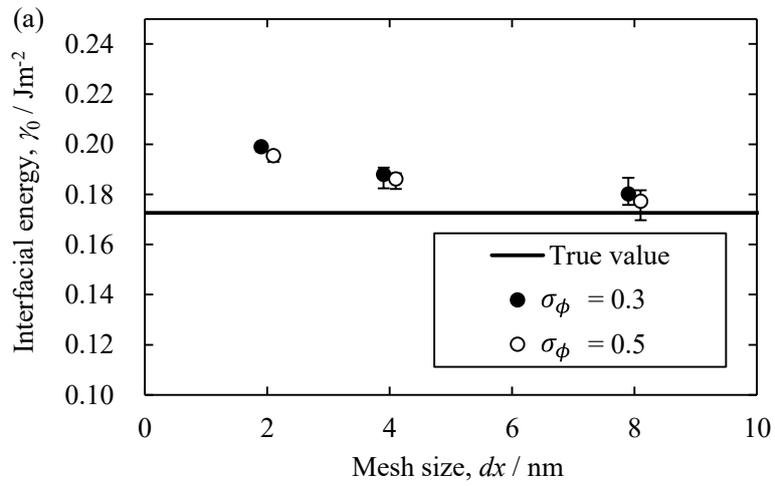


Fig. 3.13 Dependence of estimation accuracy of anisotropy parameter ε_2 on system size when the other interfacial properties were already known.



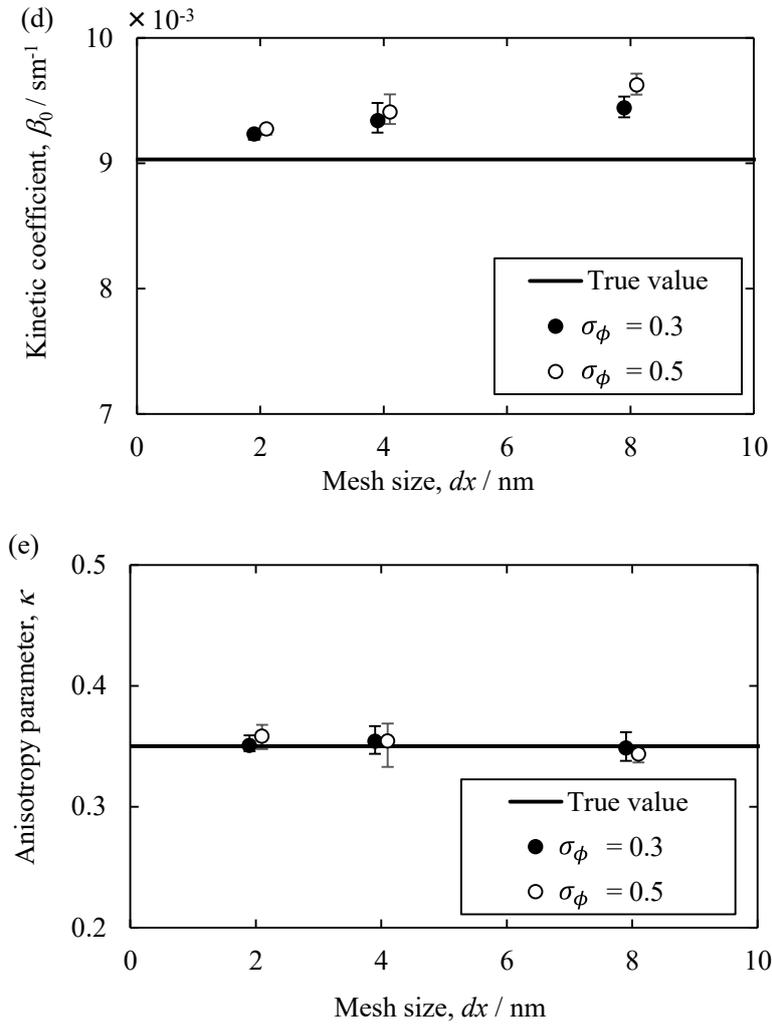


Fig. 3.14 Dependence of estimation results of all interfacial properties on mesh size when system size was 512^2 nm^2 . (a) Average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 , (d) average of kinetic coefficient and (e) anisotropy parameter of kinetic coefficient.

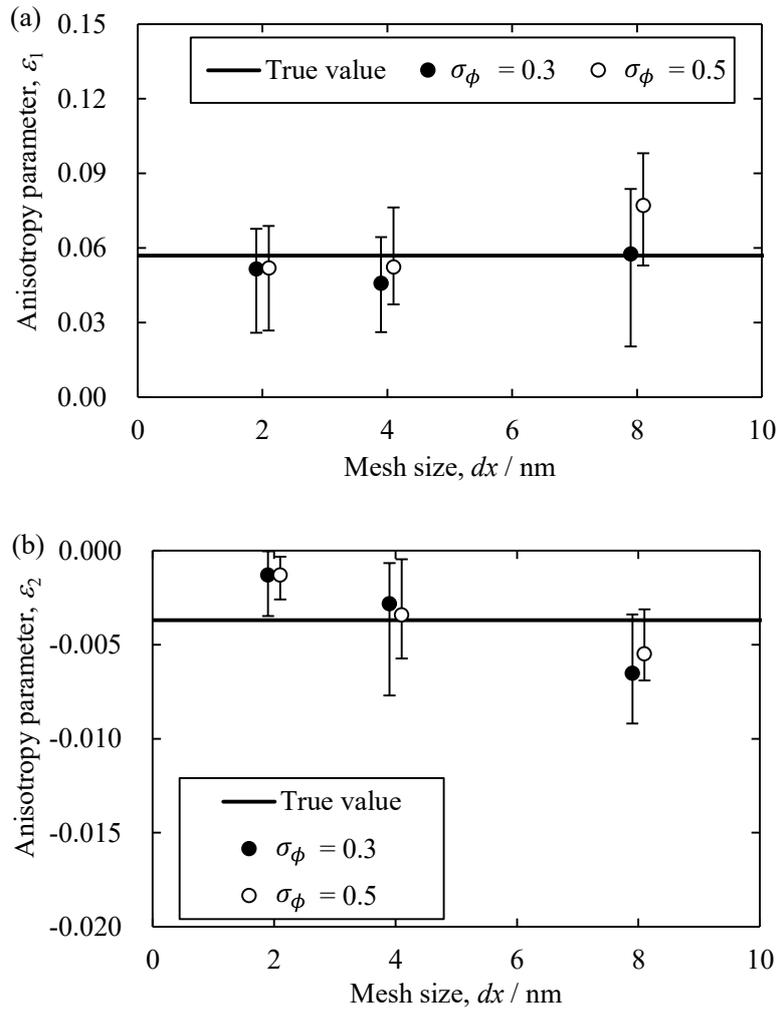


Fig. 3.15 Dependence of estimation results of average and anisotropy parameter of interfacial energy on system size when average and anisotropy parameter of kinetic coefficient were already known and system size was 512^2 nm^2 . (a) Anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 .

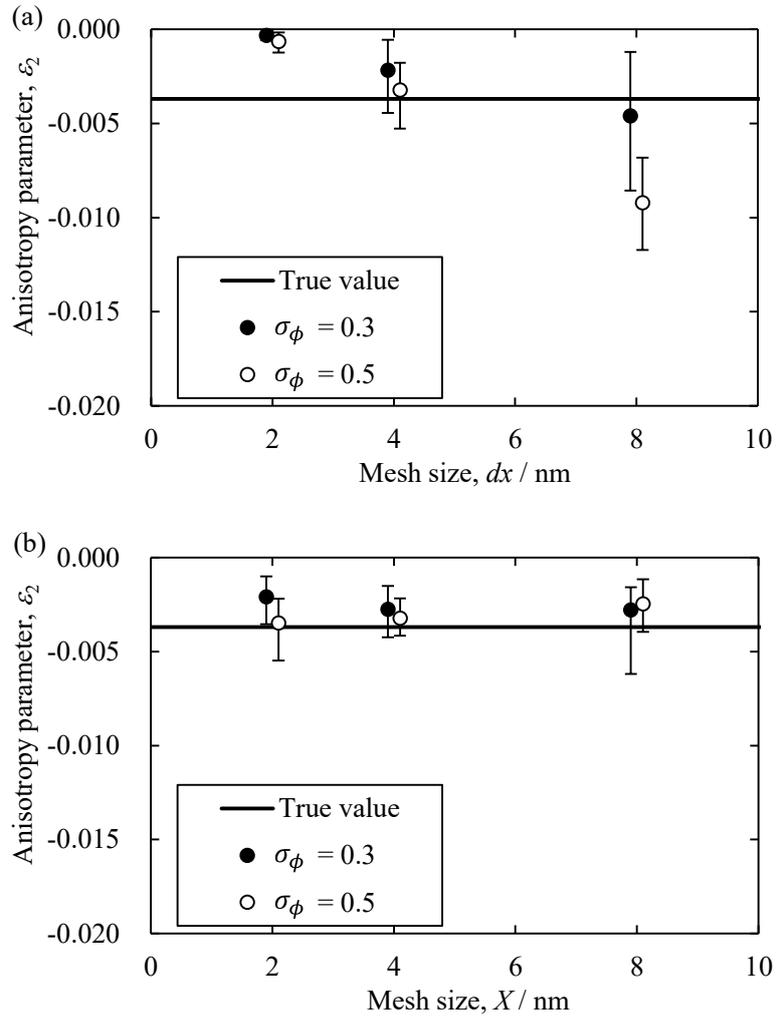
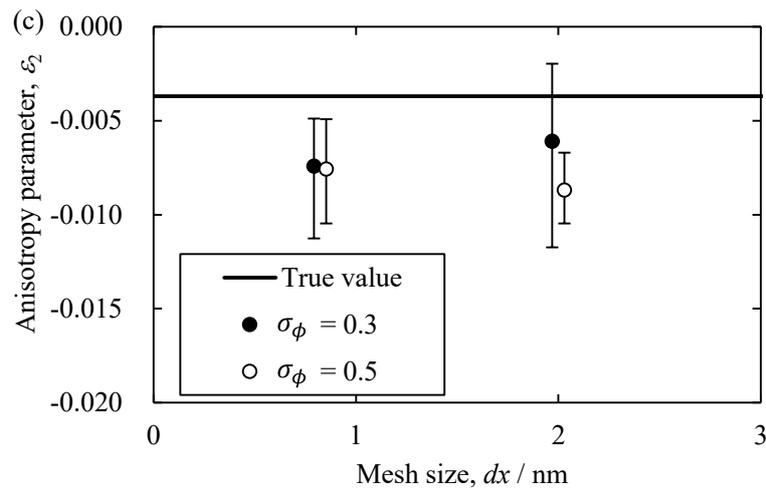
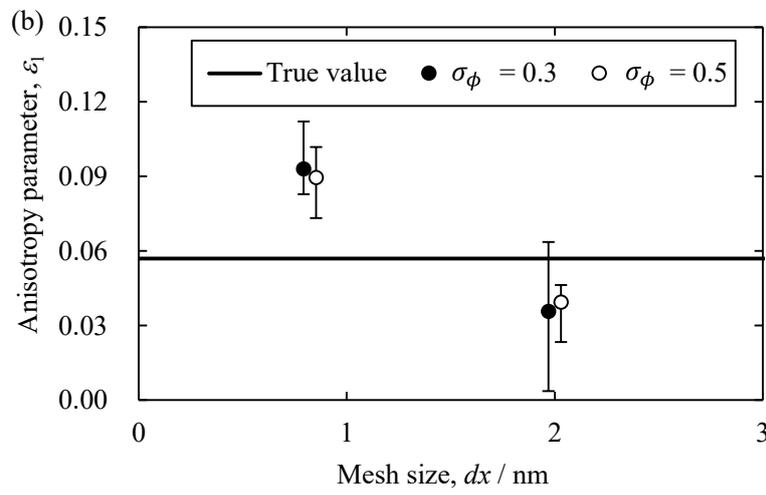
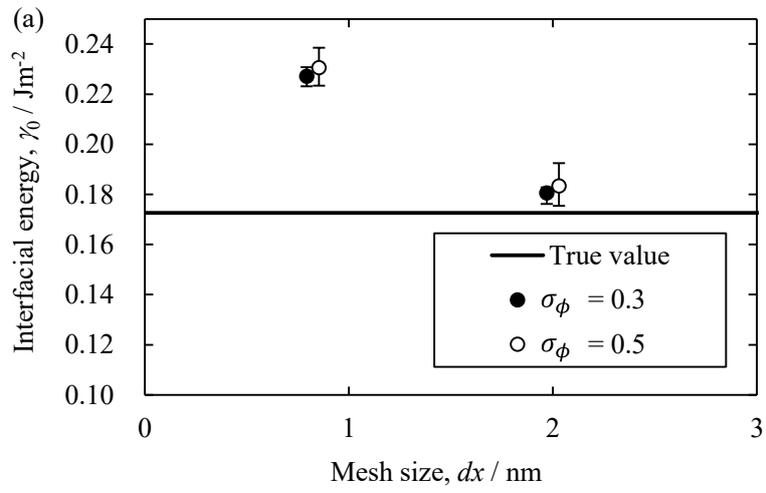


Fig. 3.16 Dependence of estimation results of anisotropy parameter ε_2 on system size when the other interfacial properties were already known and system size was (a) 512^2 nm^2 , (b) 1024^2 nm^2 .



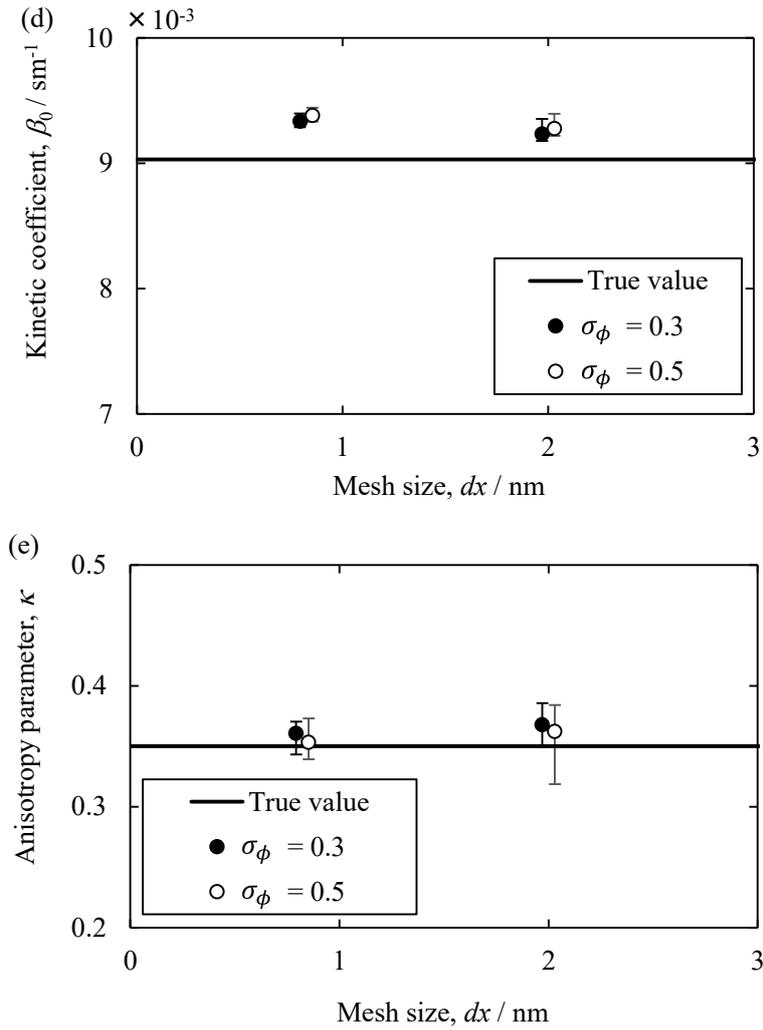


Fig. 3.17 Dependence of estimation results of all interfacial properties on mesh size when system size was 105.3^2 nm^2 . (a) Average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 , (d) average of kinetic coefficient and (e) anisotropy parameter of kinetic coefficient.

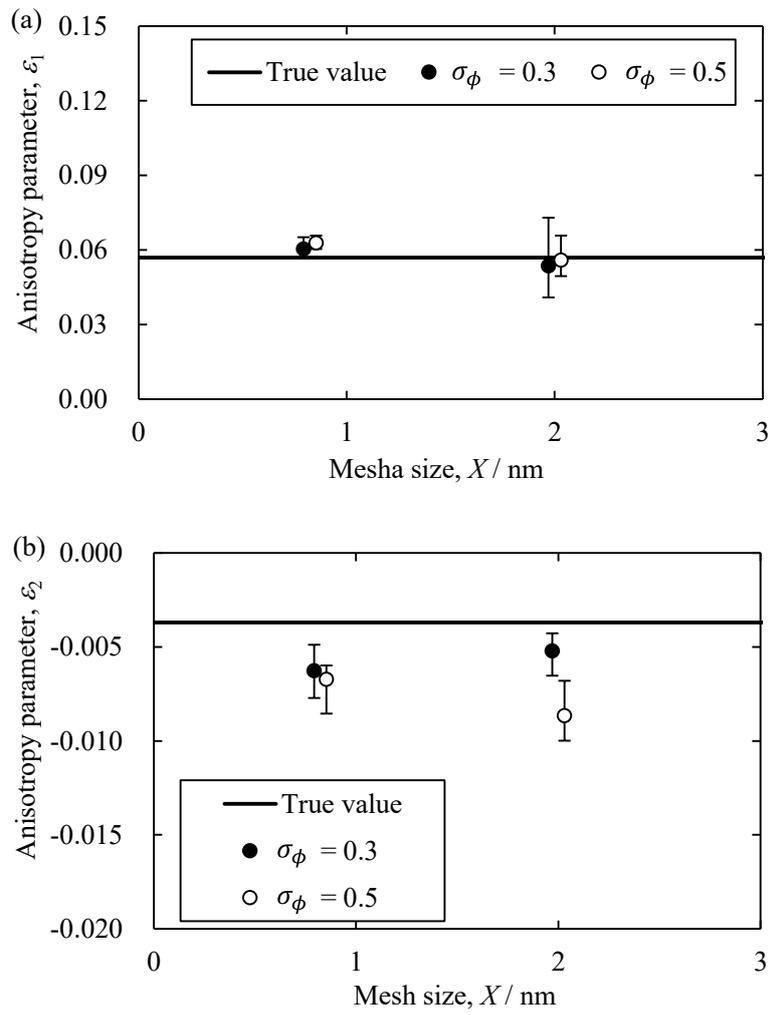


Fig. 3.18 Dependence of estimation accuracy of anisotropy parameters of interfacial energy on mesh size when system size was 105.3^2 nm^2 . (a) Anisotropy parameter ϵ_1 and (b) ϵ_2 .

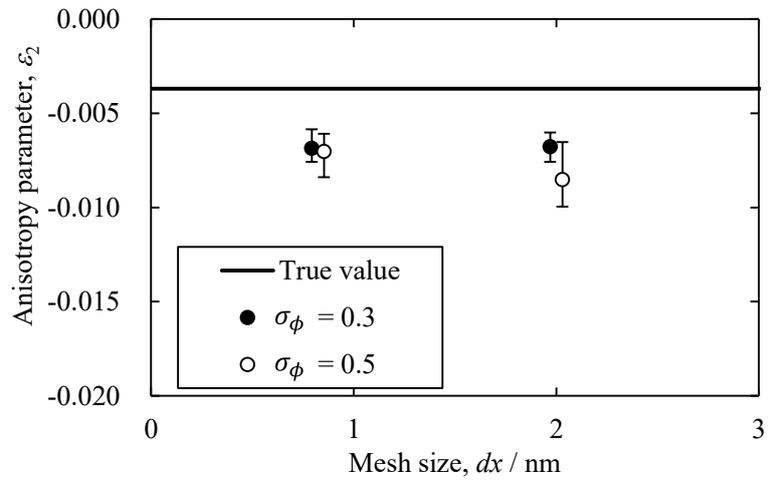


Fig. 3.19 Dependence of estimation results of ε_2 on mesh size when system size was 105.3^2 nm^2 .

第4章 データ同化に基づいた固液界面物性値の推定

4.1 緒言

近年、大規模計算技術の発展によって、原子シミュレーションの大規模化が進んでいる。分子動力学法による凝固シミュレーションは、現在までフェーズフィールド法などの連続体モデルで扱ってきた大きさのシステムを計算可能となっている。したがって、分子動力学法とフェーズフィールド法の計算結果を直接比較することが可能になっている。本研究では分子動力学法によって得られた凝固組織の時間変化を観測データとして、フェーズフィールド法にデータ同化することで固液界面物性値の推定を試みた。

第3章では、双子実験によって、粒子フィルタで固液界面物性値を推定するための方法を開発した。その結果、同時に推定する固液界面物性値の数を段階的に減らして推定を行う、多段階推定が固液界面物性値の決定に有効であることが明らかとなった。また、従来の方法では固液界面エネルギーと界面カイネティック係数をそれぞれ異なる分子動力学法の計算を用いて算出する必要があるが、この多段階推定では、単一の分子動力学計算から全ての固液界面物性値を推定することができる。これは今までに開発されたことのない手法である。更に、多段階推定は過冷状態における固液界面物性値を推定できる方法である。

本章では多段階推定を用いて、実際に分子動力学法による凝固シミュレーションで得られた観測データから固液界面物性値を推定した。

4.2 計算方法

本研究では、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観測データとしてデータ同化に用いた。以下に観測データの概要を説明する。

純Alの等温凝固を対象に、分子動力学法によって過冷液相中における固相の成長をシミュレートし、得られた凝固組織の時間変化を観測データとした。ポテンシャルには Mishin の EAM ポテンシャルを用いた[1]。Mishin の EAM ポテンシャルでは、純Alの融点 T_m は約 870 K、比熱 C_p は $33.8 \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-1}$ 、潜熱 L は $1.1 \times 10^9 \text{ Jm}^{-3}$ である。シミュレーションの初期状態の模式図を Fig. 4.1 に示す。一辺が 105.3 nm の擬二次元のシステムを用意し、一辺が 4 nm の立方体を八角柱に成形した固相を過冷液相の中心に挿入した。システムの紙面方向の厚さは 4 nm である。全体の粒子数はおよそ 260 万個とした。システム全体を 695 K に制御し、過冷溶液中における固相の二次元的な成長を解析した。計算は LAMMPS を用いて行った。また、第3章で扱ったシステムと同じく、結晶の方位は図に示す通りとした。このとき、結晶の紙面に平行な面は(110)面となっている。これは、第3章で説明したように、固液界面エネルギーの異方性パラメータ ϵ_1 および ϵ_2 の両方を推定するためである。3次元における固液界面エネルギーは以下の通りである。

$$\gamma(\mathbf{n}) = \gamma_0 a_\gamma(\mathbf{n}) \quad (4.1)$$

$$a_\gamma(\mathbf{n}) = 1 + \varepsilon_1 \left(\sum_{i=1}^3 n_i^4 - \frac{3}{5} \right) + \varepsilon_2 \left(3 \sum_{i=1}^3 n_i^4 + 66n_1^2 n_2^2 n_3^2 - 17 \right) \quad (4.2)$$

γ_0 は固液界面エネルギーの平均値、 ε_1 、 ε_2 は異方性パラメータである。 \mathbf{n} は固液界面に垂直なベクトル、 n_1 、 n_2 、 n_3 は \mathbf{n} の成分である。この式は以下のように変形できる。

$$\gamma(\mathbf{n}) = \gamma_0 \left[1 + (\varepsilon_1 + 3\varepsilon_2) \sum_{i=1}^3 n_i^4 + 66\varepsilon_2 n_1^2 n_2^2 n_3^2 - \frac{3}{5}\varepsilon_1 - 17\varepsilon_2 \right] \quad (4.3)$$

例えば(001)面上では常に $n_3 = 0$ となるため、右辺かつこ内の第3項が常に0となる。このとき固液界面エネルギーは $[(\varepsilon_1 + 3\varepsilon_2) \sum_{i=1}^3 n_i^4]$ のみによって変化するため、 ε_1 と ε_2 の寄与が独立に現れず、それぞれの値を推定することができない。一方、Fig. 4.1に示した通り、(011)面上では n_1 、 n_2 、 n_3 の全てが常に0とならないので、 ε_1 と ε_2 の固相の成長への寄与がそれぞれ独立に現れるため、 ε_1 と ε_2 の両方の推定が可能となる。

分子動力学法の結果のスナップショットの一部を Fig. 4.2 (a)に示す。中心の固相が時間の経過と共に成長する様子がわかる。次に、分子動力学法の結果を観測データとして用いるために行った処理を説明する。固液界面物性値の推定では、分子動力学法の結果を観測データとして、データ同化によってフェーズフィールド法に取り入れる。したがって、分子動力学法の結果をフェーズフィールド法と直接比較できる形にする必要がある。本研究では分子動力学法の結果を離散的な形に変換した。まず系全体を 128^2 のメッシュに分割し、ある格子点が液相であれば秩序変数 ϕ を $\phi = -1$ 、固相であれば $\phi = 1$ とした。澁田靖准教授のグループから提供を受けたのは、このように分子動力学法の結果をメッシュ分割し、各格子点に秩序変数 ϕ の値を与えたものである。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 ϕ のプロファイルを拡散させ、固相と液相の間に diffuse interface を生成した。このとき用いた式を以下に示す[2]。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = W_0^2 \nabla^2 \phi - W_0^2 |\nabla \phi| \nabla \left(\frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \right) + (1 - \phi^2) \phi \quad (4.4)$$

ここで W_0 は界面幅である。この方程式を解くと、固液界面において ϕ が徐々になだらかになり、固相の形状を変えずに diffuse interface のデータに変換できる。この操作によって得られた結果の一部を Fig. 4.2 (b)に示す。この結果を観測データとしてデータ同化に用いた。また、Fig. 4.3 に系の中心から $[\bar{1}00]$ 方向の固液界面までの距離 x_{100} と、固相の中心から $[01\bar{1}]$ 方向の固液界面までの距離 x_{011} の時間変化を示す。(110)面上で固相が十分成長すると、 x_{100} と x_{011} の間に差が生じる。観測データでは凝固開始から 200 ps 以降に x_{100} と x_{011} の差が現れた。したがって、本研究では凝固開始から 200 ps 後以降の観測データを用いて推定を行った。なお、この x_{100} と x_{011} の時間変化を観測データとして用いた場合、固液界面物性値の推定は行えなかった。これは固液界面物性値の推定を行うためには、 x_{100} および x_{011} のみを用いるよりも更に多くの情報が必要であるということを示唆している。

以下に、データ同化で行ったフェーズフィールド法による凝固シミュレーションについて

て説明する。各粒子のシミュレーションの初期状態は、Fig. 4.2 (b)に示す凝固開始から 200 ps 後の観測データとした。その後シミュレーションを行い、100 ps 経過後から推定を開始した。粒子数は 50000、タイムステップは 0.1 ps とした。粒子フィルタでは一般に粒子数が大きくなるほど推定精度が向上する。しかし、粒子数が多いほど計算コストが大きくなる。ここで用いた粒子数は、計算コストを考慮したとき用いることができる最大の数であり、推定精度をできる限り向上させる目的で設定した。各粒子のシミュレーションで用いる固液界面物性値の初期値は、固液界面エネルギーの平均値は $0 \sim \gamma_0^{ini}$ Jm⁻²、異方性パラメータ ε_1 は $0 \sim \varepsilon_1^{ini}$ 、異方性パラメータ ε_2 は $0 \sim \varepsilon_2^{ini}$ 、界面カイネティック係数の平均値は $0 \sim \beta_0^{ini}$ sm⁻¹、異方性パラメータ κ は $0 \sim \kappa^{ini}$ の範囲から乱数によって決定した。フィルタリングの手順は第 3 章で説明したものと同様である。各粒子の尤度は、式(3.1)の $\phi^{t,ob}$ を、分子動力学法による観測データの各格子点における秩序変数に置き換えた式で計算した。

4.3 固液界面物性値の推定結果

まず、 γ_0 、 β_0 、 ε_1 、 ε_2 、 κ を同時に推定した。このとき推定は 20 ps 毎に行い、観測ノイズの標準偏差 σ_ϕ は 0.3 とした。双子実験では推定の時間間隔が大きいほど推定精度が高いという結果が得られていたが、推定を行う間隔を 20 ps よりも長くした場合、本研究においては推定の回数が非常に少なくなり、推定値が収束したかわからなくなってしまうため、20 ps 毎に推定を行った。

まず、各粒子のパラメータがフィルタリングによってどのように変化したのか例を示す。代表して、3 つの粒子の β_0 および κ の変化を Fig. 4.4 に示す。Fig. 4.4 (a) は粒子 1、2、3 の β_0 の時間変化、Fig. 4.4 (b) は粒子 1、2、3 の κ の時間変化を示したものである。200 ps の時点にあるプロットが粒子 1、2、3 それぞれに初期値として与えられた β_0 および κ である。 β_0 に着目すると、フィルタリングを最初に行った 300 ps で、それぞれの粒子の β_0 がある程度一定値へ収束している。一方、 κ は粒子 1、2、3 それぞれの値が徐々に大きくなり、400 ps 以降はある程度一定の値へ収束している。また、このとき γ_0 、 ε_1 、 ε_2 も同時に推定しているため、各粒子の γ_0 、 ε_1 、 ε_2 も同様にフィルタリングによって変化している。

各時刻のリサンプリング後の粒子の平均値をその時刻の推定値とした。そして、フィルタリングを繰り返すことで推定値がどのように変化したのか、Fig. 4.5 に示す。同条件で 5 回推定を行い、各時刻における推定値の平均をプロット、最小値と最大値をエラーバーで示した。 γ_0 の推定値は一定の値に収束せず、推定開始から終了にかけて推定値が上昇する傾向にあった。また、各時刻の推定値は文献値として報告されている Capillary fluctuation method で算出された γ_0 の値の範囲内であった[3,4]。また、 ε_1 、 ε_2 はどちらも推定値に大きなばらつきが見られた。一方、 β_0 および κ は推定値がある程度一定の値へ収束した。第 3 章では、固液界面物性値の中で β_0 と κ の推定値の収束性が良く、固液界面物性値を同時に推定したとき、推定条件を変更しても高精度な推定が可能であることが明らかとなった。したがって、こ

でも β_0 および κ が推定可能であると考えられる。

更に推定結果の信頼性を向上させるため、異なる条件下で推定を行った。具体的には、 γ_0^{ini} 、 ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} 、 β_0^{ini} 、 κ^{ini} の値が異なる場合について推定を行った。粒子フィルタが有効に作用していない場合、粒子が適切に更新されないため、 γ_0^{ini} 、 ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} 、 β_0^{ini} 、 κ^{ini} の値によって推定結果が大きく変化することが考えられる。したがって、これらの値に関わらず同様の推定結果が得られれば、推定結果の信頼性が高いと言える。

推定の間隔は 20 ps とし、450 ps 以降の各時刻の推定値を平均したものを推定結果とした。 σ_ϕ は 0.3 または 0.5 とした。Fig. 4.6 に結果を示す。同条件で 5 回推定を行い、推定結果の平均値をプロット、最小値と最大値をエラーバーで示した。 γ_0 、 β_0 と κ は γ_0^{ini} 、 β_0^{ini} 、 κ^{ini} を変更しても推定結果は変化しなかった。Fig. 4.5 に示した結果では γ_0 の推定値は一定値に収束しなかったが、推定結果は γ_0^{ini} に依存しなかったことから、 γ_0^{ini} の値に関わらず推定値が同様の時間変化をしたと言える。一方、 ε_1 および ε_2 は ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} によって推定結果が大きく異なっていることがわかる。これは、この段階では粒子フィルタによって ε_1 および ε_2 の推定ができなかったことを意味している。第 3 章では、全ての固液界面物性値を同時に推定した場合、 β_0 と κ を推定できることが明らかとなっていた。本章でも、 β_0 と κ はある程度一定値に収束し、かつ異なる推定条件を用いても同様の推定結果が得られた。したがって、ここで得られた結果は多段階推定の一段階目として妥当である。また、図中の全てのプロットの値を平均した値をそのパラメータの推定結果とした。 β_0 の推定結果は $4.5 \times 10^{-3} \text{ sm}^{-1}$ であり、文献値と同じオーダーであった。一方、 κ の推定結果は 0.70 であり、文献値と比較して大きな値であった[5]。ただし、文献とは分子動力学法に用いている原子間ポテンシャルが異なるため、単純に比較することはできない。そこで、 κ の推定結果の信頼性を更に向上させるために、多段階推定の二段階目として、 γ_0 、 ε_1 、 ε_2 、 κ を同時に推定した。

γ_0 、 ε_1 、 ε_2 、 κ を同時に推定した場合の各時刻の推定値の時間変化を Fig. 4.7 に示す。推定の後半で γ_0 および κ が一定の値に収束した。一方、 ε_1 と ε_2 の推定値のばらつきは、全ての固液界面物性値を同時に推定した場合と比較すると小さくなったことから、多段階推定が有効に作用し、推定精度が向上したと言える。Fig. 4.8 に γ_0^{ini} 、 ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} 、 κ^{ini} に異なる値を用いた場合の推定結果を示す。 γ_0 および κ は、 γ_0^{ini} 、 κ^{ini} による推定結果の変化は見られなかった。 ε_1 、 ε_2 は ε_1^{ini} および ε_2^{ini} の値によって推定結果が変化した。このとき、 κ の推定結果は 0.69 であり、多段階推定の一段階目と近い推定結果となった。 γ_0 の推定結果は 0.18 Jm^{-2} であった。 κ および γ_0 の推定値が一定に収束し、推定条件を変更しても推定結果が変化しなかったことから、多段階推定の二段階目として、 κ および γ_0 が推定できたと言える。また、第 3 章で述べた通り、現在固液界面エネルギーの算出方法として代表的な方法である Capillary fluctuation method では、 γ_0 の算出結果に $\pm 10\%$ 程度以内のばらつきが生じることが多い[4,6]。本研究で得られた γ_0 および κ の推定結果のばらつきは、推定結果に対して $\pm 10\%$ 以内であった。

次に、多段階推定の三段階目として、 ε_1 と ε_2 を同時に推定した。推定値の時間変化を Fig.

4.9 に示す。 ε_1 は推定値のばらつきが小さく、ある程度一定の値へ推定値が収束した。一方、 ε_2 は推定値のばらつきが大きい。Fig. 4.10 に ε_1^{ini} 、 ε_2^{ini} の影響を調査した結果を示す。 ε_1 は ε_1^{ini} による推定結果の変化は見られなかった。一方、 ε_2 は ε_2^{ini} の絶対値が小さくなると推定結果が小さくなる傾向があった。したがって、三段階目では ε_1 が推定できたと言える。ここで、 ε_1 の推定結果は0.007であった。

多段階推定の四段階目として、 ε_2 以外のパラメータを既知として ε_2 のみ推定した。推定値の時間変化を Fig. 4.11 に示す。推定値のばらつきは多段階推定の三段階目より小さくなっており、推定値の平均はある程度一定の値へ収束した。Fig. 4.12 に ε_2^{ini} の影響を調査した結果を示す。推定結果の ε_2^{ini} の値による変化は見られなかった。このとき、推定結果は-0.0027であった。

以上より、推定を20 ps 毎に行った結果、 $\gamma_0 = 0.18 \text{ Jm}^{-2}$ 、 $\varepsilon_1 = 0.007$ 、 $\varepsilon_2 = -0.0027$ 、 $\beta_0 = 4.5 \times 10^{-3} \text{ sm}^{-1}$ 、 $\kappa = 0.69$ という推定結果が得られた。ここで、 γ_0 および ε_2 の推定結果は文献で報告されている Capillary fluctuation method で算出された値の範囲と一致する[3,4]。 β_0 は文献値[5]と同じオーダーであった。一方、 κ の推定結果は文献値[5]よりも非常に大きく、 ε_1 は文献値[3,4]よりも小さい値であった。ただし、文献値で用いられた分子動力学法の原子間ポテンシャルと、本研究で観測データとした分子動力学法の原子間ポテンシャルが異なるため、単純に比較することはできない。

以上より、実際の分子動力学法による凝固シミュレーションの結果から、粒子フィルタに基づく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。このとき、多段階推定によって、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った。従来は固液界面エネルギーと界面カイネティック係数をそれぞれ異なる分子動力学計算によって算出する必要があった。したがって、多段階推定はより簡便に固液界面物性値を決定できる方法であると言える。また、本研究では過冷状態における凝固を扱ったため、推定された固液界面物性値は過冷状態における値である。従来、固液界面エネルギーの平均値と異方性パラメータは融点における値を算出する方法によって求められていたが、多段階推定では過冷状態における値を推定することができる。

4.4 固液界面物性値の推定結果の精度検証

4.3 節で推定した固液界面物性値の精度を検証した。固液界面物性値の推定結果を用いてフェーズフィールド法による凝固シミュレーションを行い、結果を分子動力学法で得られた観測データと比較した。フェーズフィールド法で凝固シミュレーションを行う際には、観測データと同じ一辺が105.3 nmの二次元の系を対象とし、格子点数を128²、タイムステップを0.1 psとして、系全体を695 Kに保持して固相の成長を解析した。このとき、初期状態を2通り用意し、それぞれの場合について計算を行った。1つは分子動力学法で得られた観測データのうち、凝固開始から200 ps後のものを初期状態とした場合である。これは粒子

フィルタによって推定を行うとき、各粒子のシミュレーションで設定した初期状態と同じである。もう 1 つは液相の中心に直径 4 nm の固相の核が埋め込まれたものを初期状態とした場合を想定した。

Fig. 4.13 に結果を示す。固相の中心から $[\bar{1}00]$ 方向の固液界面までの距離を x_{100} 、固相の中心から $[01\bar{1}]$ 方向の固液界面までの距離を x_{011} として、これらの値の時間変化を示した。(a) は 200 ps における観測データを初期状態とした場合、(b) は直径 4 nm の固相を液相中に埋め込んだものを初期状態とした場合である。横軸は分子動力学法による観測データが得られた時刻を示している。プロットは分子動力学法による観測データ、実線および点線はフェーズフィールド法の結果である。凡例には分子動力学法を MD、フェーズフィールド法を PF と略して表記した。まず 200 ps における観測データを初期状態とした場合、フェーズフィールド法と分子動力学法の結果は x_{100} 、 x_{011} ともによく一致した。ここで、フェーズフィールド法と分子動力学法の結果がどの程度一致しているか、以下の式に示す平均平方二乗誤差 (RRMSE) を用いて評価した。

$$RRMSE [\%] = 100 \times \sqrt{\frac{1}{N} \sum \frac{(x_{MD} - x_{PF})^2}{x_{MD}^2}} \quad (4.5)$$

ここで N はグラフ内に示されている 1 種類のプロットの数である。 x_{MD} および x_{PF} はそれぞれ分子動力学法、フェーズフィールド法の x_{100} または x_{011} の値である。 x_{100} の RRMSE は 3.8%、 x_{011} の RRMSE は 1.9% であった。また、各時刻の分子動力学法とフェーズフィールド法の差は最大 2.5 nm、分子動力学法とフェーズフィールド法の差の時間平均は x_{100} では 1.1 nm、 x_{011} では 0.5 nm であった。純 Al を対象とした分子動力学法において、平滑な固液界面を融点において保持すると、固液界面に 2.0 nm 程度のゆらぎが生じる[6]。分子動力学法における固液界面のゆらぎの大きさを考慮すると、両者は良く一致していると言える。一方、半径 2 nm の固相を液相中に埋め込んだものを初期状態とした場合、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。このとき、 x_{100} の RRMSE は 25.9%、 x_{011} の RRMSE は 19.9% であった。各時刻の分子動力学法とフェーズフィールド法の差は最大 3.3 nm、分子動力学法とフェーズフィールド法の差の時間平均は x_{100} では 2.8 nm、 x_{011} では 0.08 nm であった。半径 2 nm の固相を液相中に埋め込んだものを初期状態とした場合、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る理由はいくつか考えられる。

まず、フェーズフィールド法のモデルに着目する。粒子フィルタによって固液界面物性値を推定するとき、シミュレーションには第 2 章で説明したフェーズフィールド法のモデルを用いた。また、推定精度の検証のために固液界面物性値を用いて凝固シミュレーションを行うときも、同じモデルを用いた。第 2 章でも示した秩序変数の時間発展方程式を以下に示す。

$$\tau(n)\partial_t\phi = \quad (4.6)$$

$$\nabla[W(n)^2\nabla\phi] + \sum_i \partial_i \left(|\nabla\phi|^2 W(n) \frac{\partial W(n)}{\partial(\partial_i\phi)} \right) + \phi - \phi^3 - h(u\lambda)(1 - \phi^2)^2 + \tau(n)\xi$$

ここで τ は係数、 W は界面幅、 ξ はゆらぎを表現するために与えられたノイズである。本研究では左辺第5項の関数 h を $h(u\lambda) = u\lambda$ とした。初期状態を200 psにおける観測データとした場合には、式4.6を解くことで、推定された固液界面物性値によって分子動力学法の結果を再現できた。しかし、固相の直径が4 nmであるものを初期状態とした場合には再現の精度が低下した。以上のことから考えられる可能性は2通りである。1つは、凝固開始後200 ps後までの時間では、ここで用いた関数 h の適切な形が $h(u\lambda) = u\lambda$ ではない可能性である。すなわち、凝固開始から200 psまでの時間に適切な関数 h を設定することで、分子動力学法の結果をより高精度に再現できる可能性がある。もう1つは、関数 h の適切な形が $h(u\lambda) = u\lambda$ ではない可能性である。この場合、4.3節で得られた固液界面物性値の推定結果は、 $h(u\lambda) = u\lambda$ とした場合のみかけの値であると言える。

次に、固液界面物性値が時間変化する可能性である。粒子フィルタでは、もし固液界面物性値が時間変化するパラメータであれば、その時間依存性が自動的に推定結果に表れる。本研究で得られた結果では固液界面物性値は時間変化せず、十分な回数の推定を行えば一定の値に収束した。ただし、凝固開始から200 ps経過するまでの観測データは考慮していない。したがって、凝固初期における固液界面物性の更なる調査が必要である。

次に、固液界面物性値の推定精度に原因がある可能性である。第3章で示した双子実験の結果から考えると、本章で示した推定条件では、固液界面エネルギーの平均値と異方性パラメータを高精度には推定できない。ここで、得られた推定結果の精度が実際に低かったと仮定すると、初期状態を変更した場合にも分子動力学法の結果をより高精度に再現するためにはより高精度な固液界面物性値が必要であると言える。ただし、凝固開始後200 ps以降の分子動力学法の結果（実際に推定で用いた観測データ）を再現するには十分高精度な推定結果が得られたと言える。

以上より、固液界面物性値の推定結果の精度を検証した結果、フェーズフィールド法によって分子動力学法の結果を再現することができた。したがって、多段階推定によって、分子動力学法で得られた観測データから固液界面物性値を実際に推定できることが明らかとなった。

4.5 結言

分子動力学法で得られた凝固組織の時間変化を観測データとして、多段階推定によって固液界面物性値を推定した。推定結果は、固液界面エネルギーの平均値が 0.18 Jm^{-2} 、異方性パラメータ ε_1 が0.007、 ε_2 が-0.0027、界面カイネティック係数の平均値が $4.5 \times 10^{-3} \text{ sm}^{-1}$ 、異方性パラメータ κ が0.69であった。推定結果を用いてフェーズフィールド法による凝固シミュレーションを行った結果、分子動力学法の結果を再現することができた。したがって、多

段階推定によって実際に固液界面物性値を推定可能であることが示された。特に、多段階推定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できるという特筆すべき特長を持つ。また、過冷状態の固液界面物性値の決定が可能である。

参考文献

- [1] R.R. Zope and Y. Mishin, *Physical Review B*, 68 (2003) 024102.
- [2] E. Miyoshi, T. Takaki, Y. Shibuta and M. Ohno, *Computational Materials Science*, 152 (2018) 118.
- [3] E. Asadi, M.A. Zaem, S. Nouranian and M. I. Baskes, *Acta Materialia*, 86 (2015) 169.
- [4] J.J. Hoyt, M. Asta and A. Karma, *Materials Science and Engineering R*, 41 (2003) 121.
- [5] S.K.D. Nath, Y. Shibuta, M. Ohno, T. Takaki and T. Mohri, *ISIJ International*, Vol. 57 No. 10 (2017) 1774.
- [6] James R. Morris, *Physical Review B*, 66 (2002) 144104.

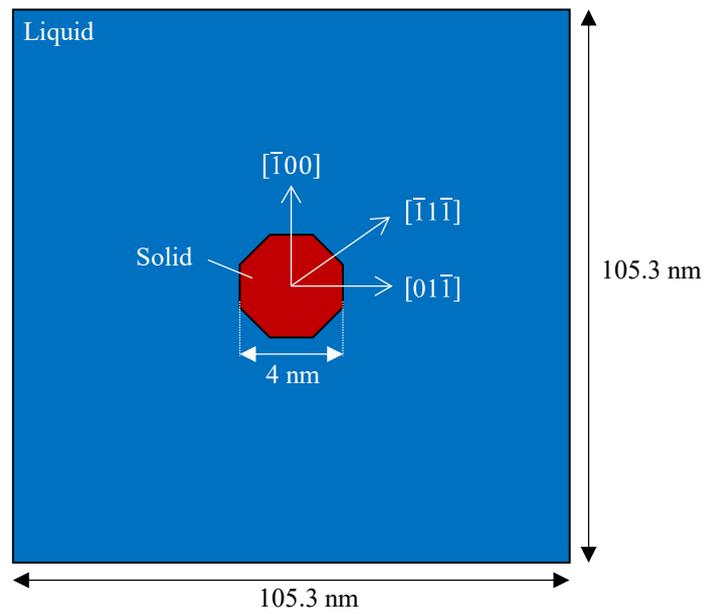


Fig. 4.1 Schematic illustration of initial condition for molecular dynamics solidification simulation.

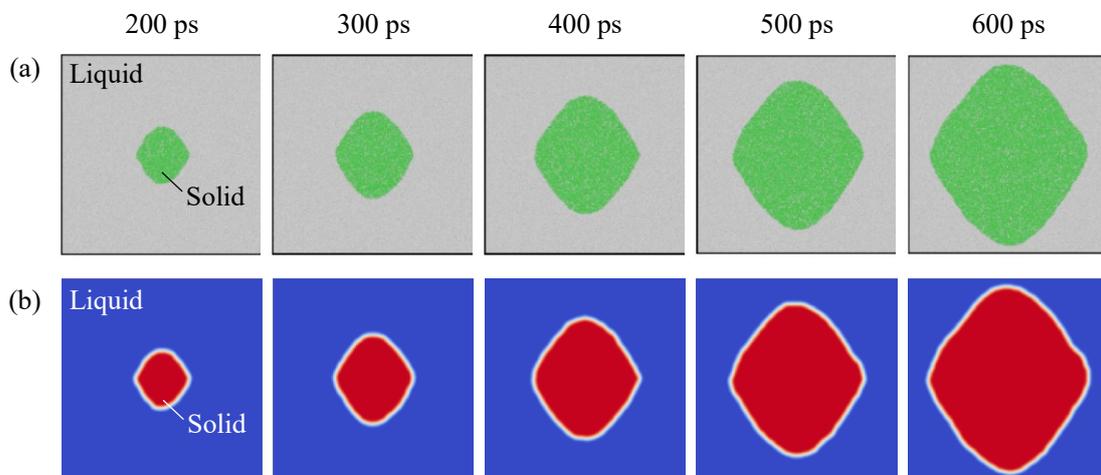


Fig. 4.2 Snapshots of evolution of solid nucleus. (a) Snapshots obtained from molecular dynamics solidification simulation, (b) observation data for data assimilation.

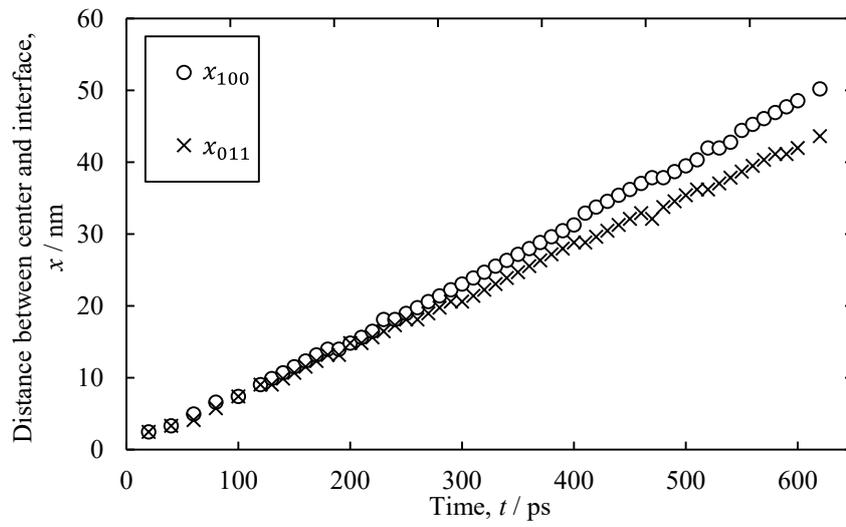


Fig. 4.3 Time dependence of distance between center of the system and solid-liquid interface.

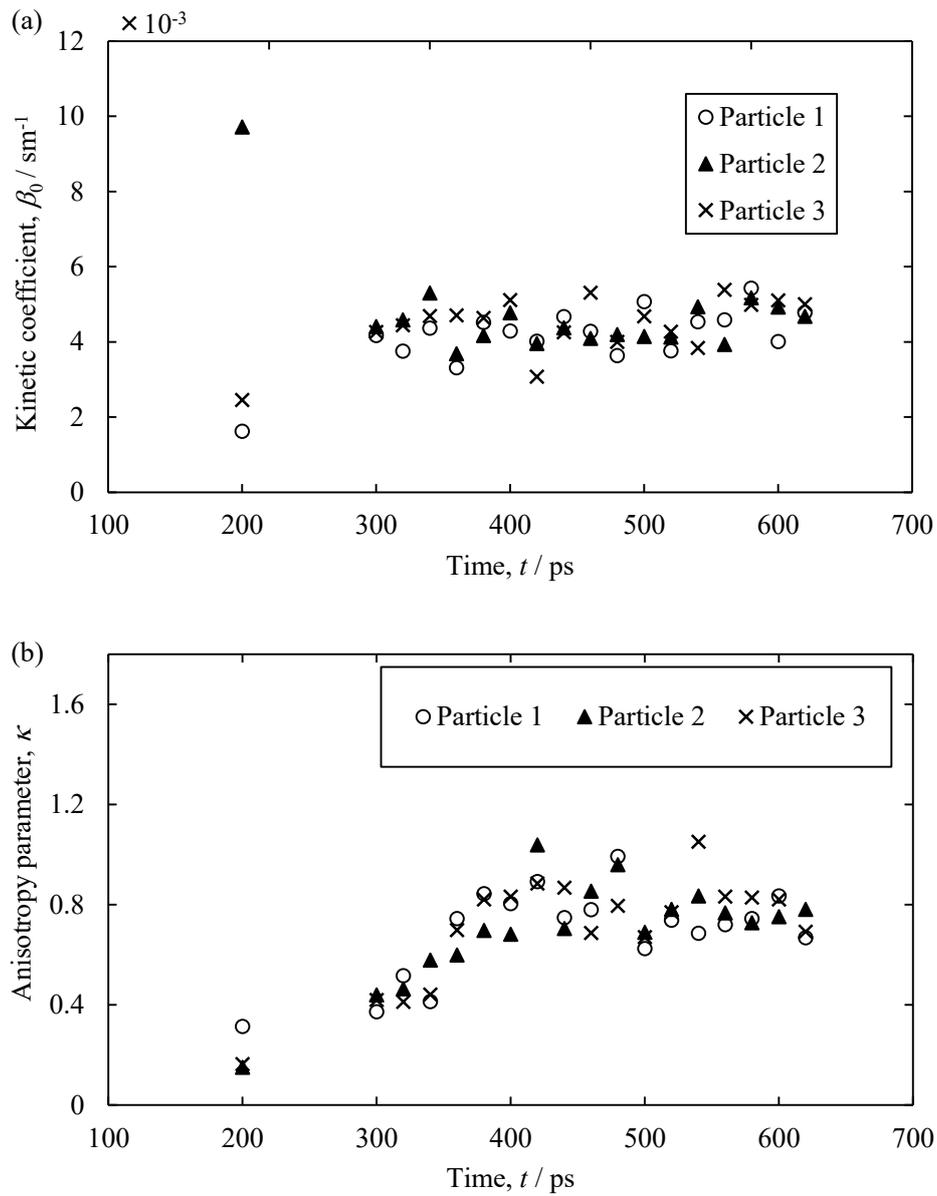


Fig. 4.4 (a) Time dependence of average of kinetic coefficient and (b) Time dependence of anisotropy parameter of kinetic coefficient of some particles when all interfacial energy were estimated simultaneously.

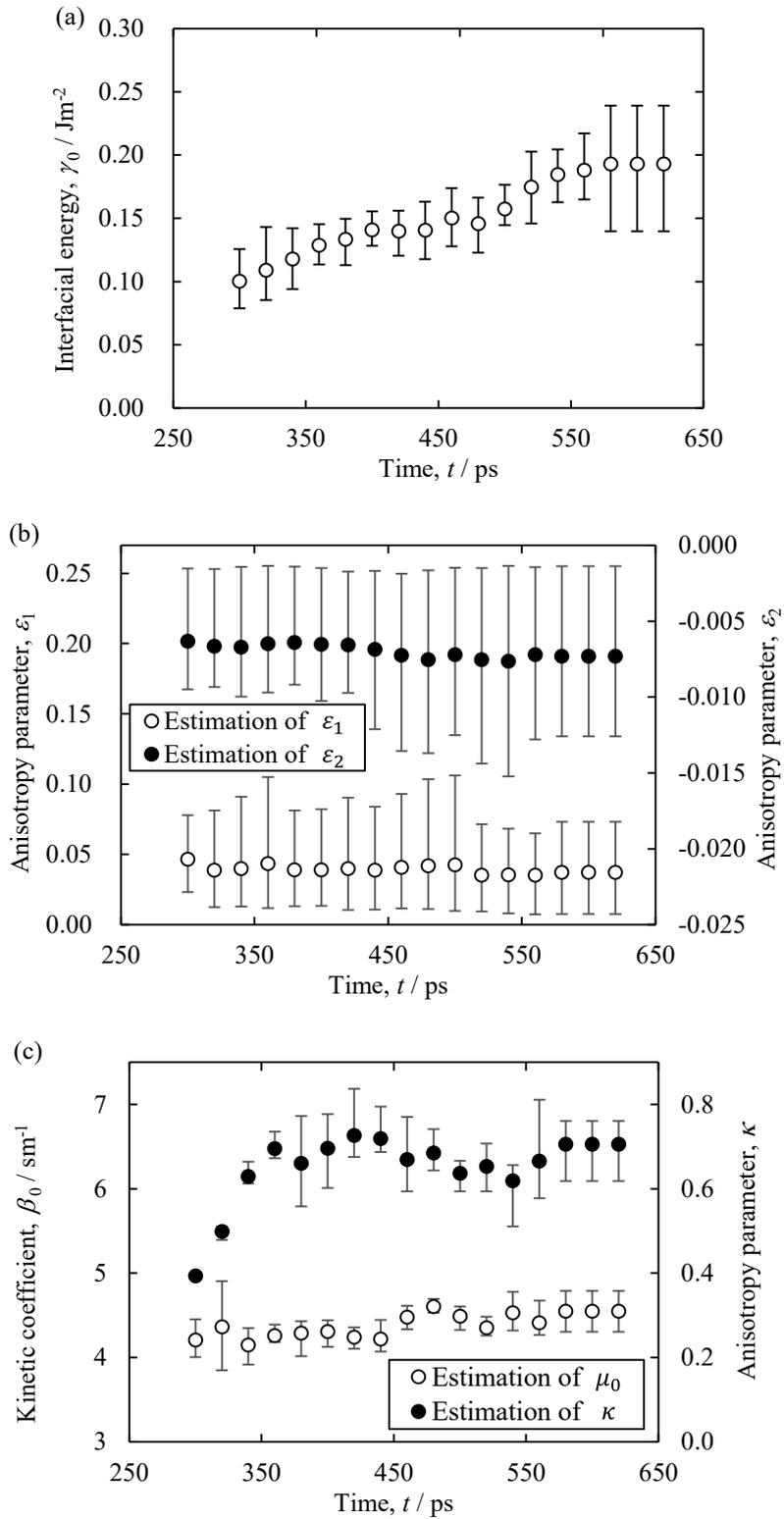


Fig. 4.5 Time dependence of estimated value of (a) average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and ε_2 , (c) average and anisotropy parameter of kinetic coefficient.

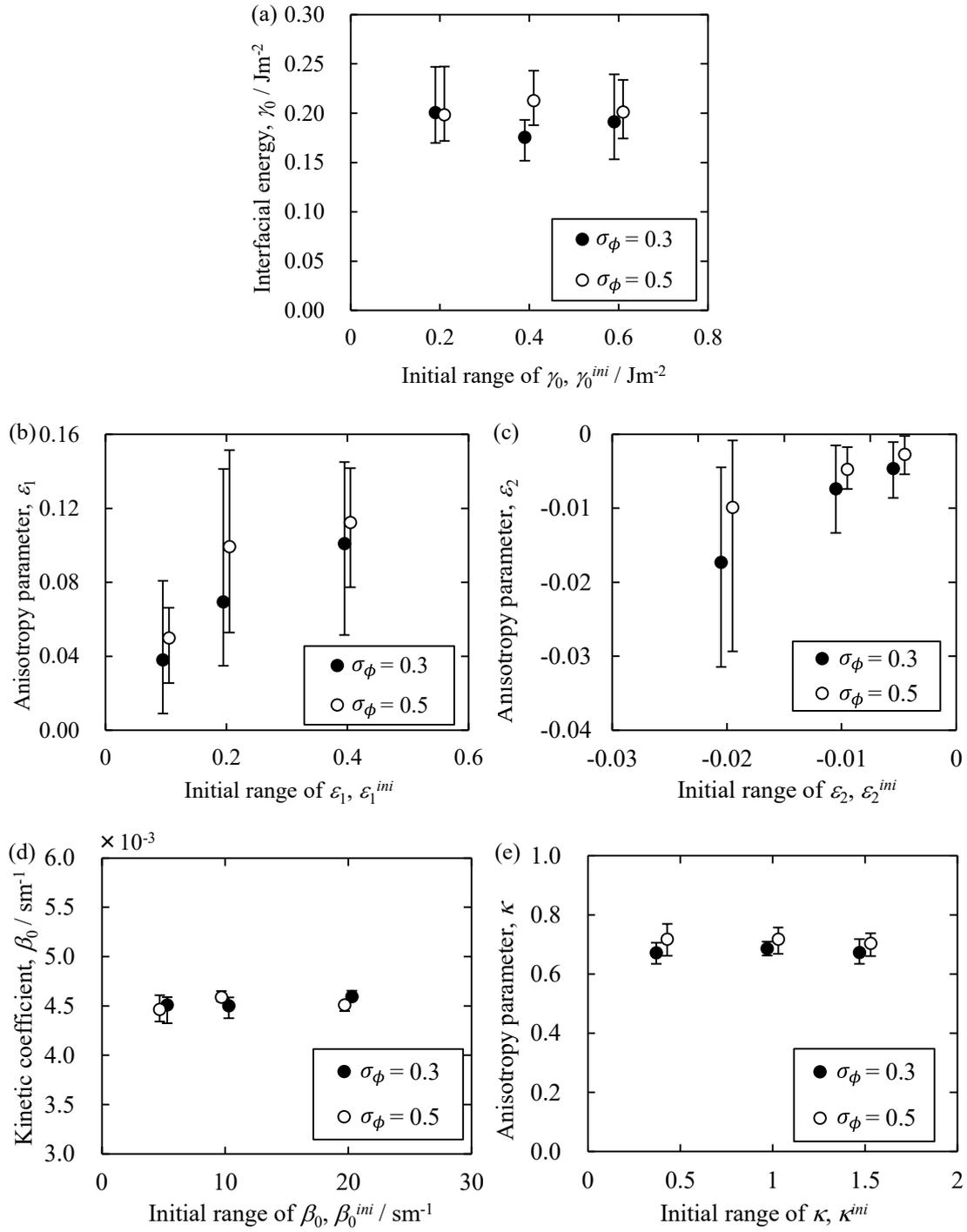


Fig. 4.6 Dependence of estimation results on the range that random number for initial value of interfacial properties for particles generated. (a) Average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 , (d) average of kinetic coefficient and (e) anisotropy parameter of kinetic coefficient.

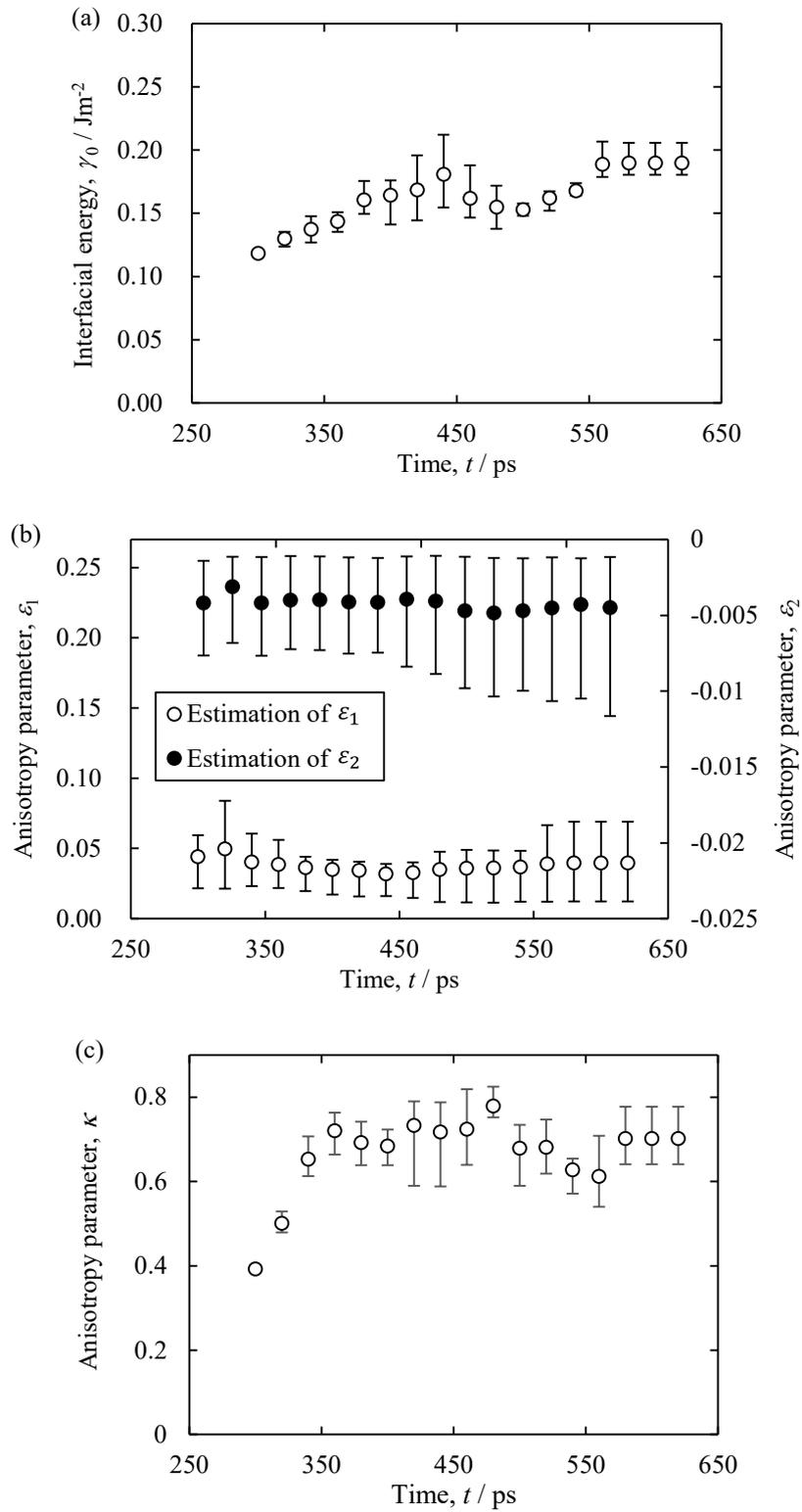


Fig. 4.7 Time dependence of estimated value of (a) average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and ε_2 , (c) anisotropy parameter of kinetic coefficient.

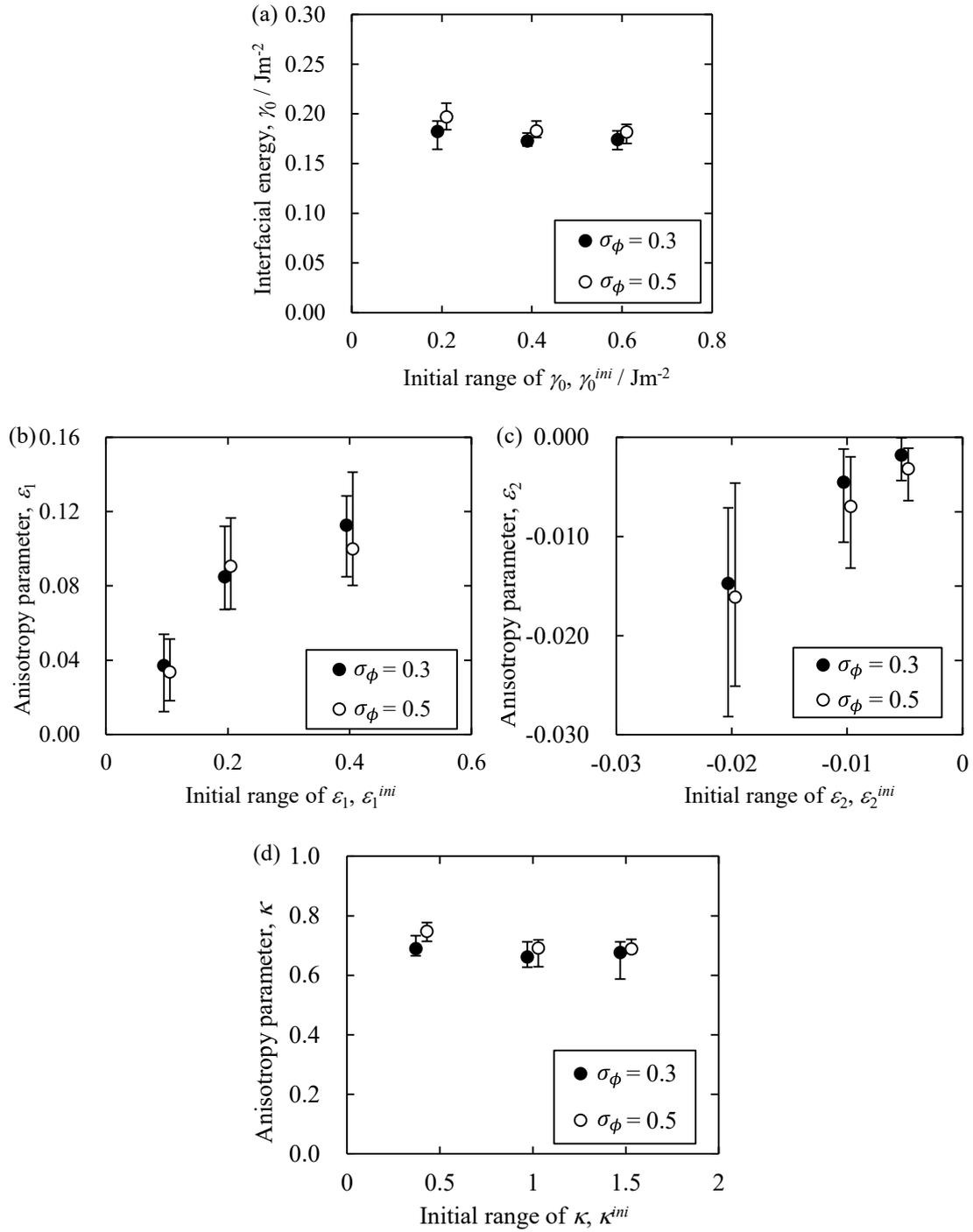


Fig. 4.8 Dependence of estimation results on the range that random number for initial value of interfacial properties for particles generated. (a) Average of interfacial energy, (b) anisotropy parameter ε_1 and (c) ε_2 , (d) anisotropy parameter of kinetic coefficient.

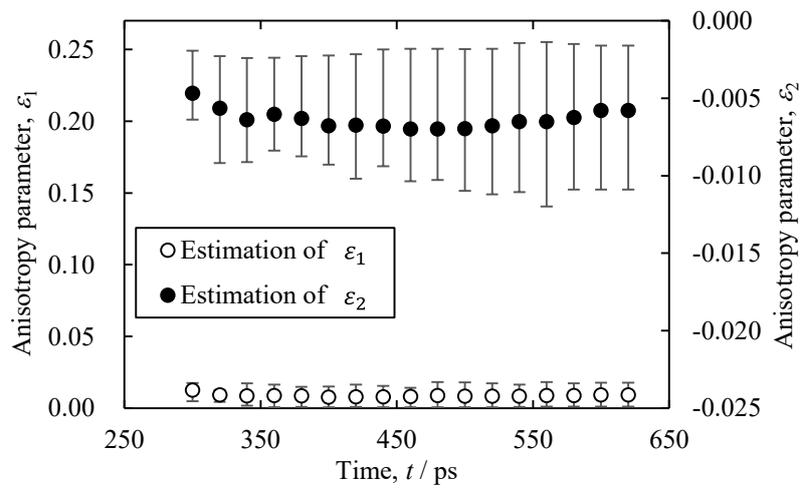


Fig. 4.9 Time dependence of estimated value of anisotropy parameter ε_1 and ε_2 .

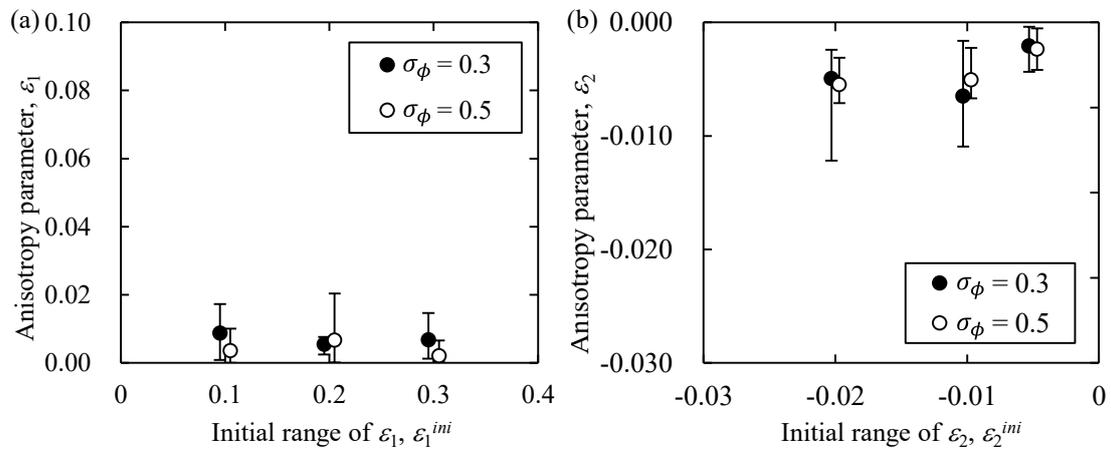


Fig. 4.10 Dependence of estimation results on the range that random number for initial value of interfacial properties for particles generated. (a) anisotropy parameter ε_1 and (b) ε_2 .

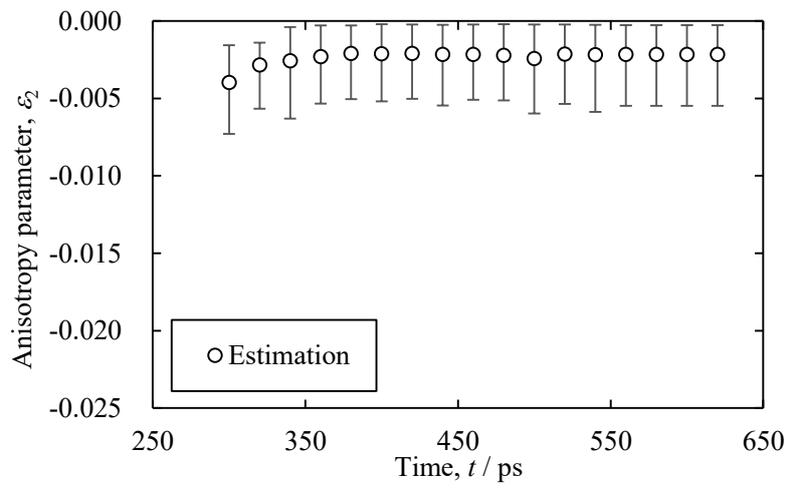


Fig. 4.11 Time dependence of estimated value of anisotropy parameter ε_2 .

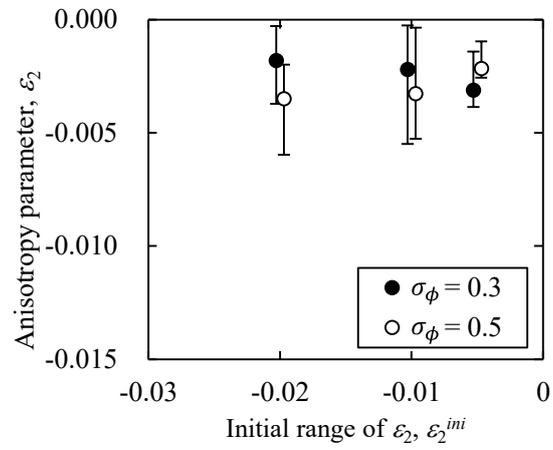


Fig. 4.12 Dependence of estimation results of anisotropy parameter ε_2 on the range that random number for initial value of interfacial properties for particles generated.

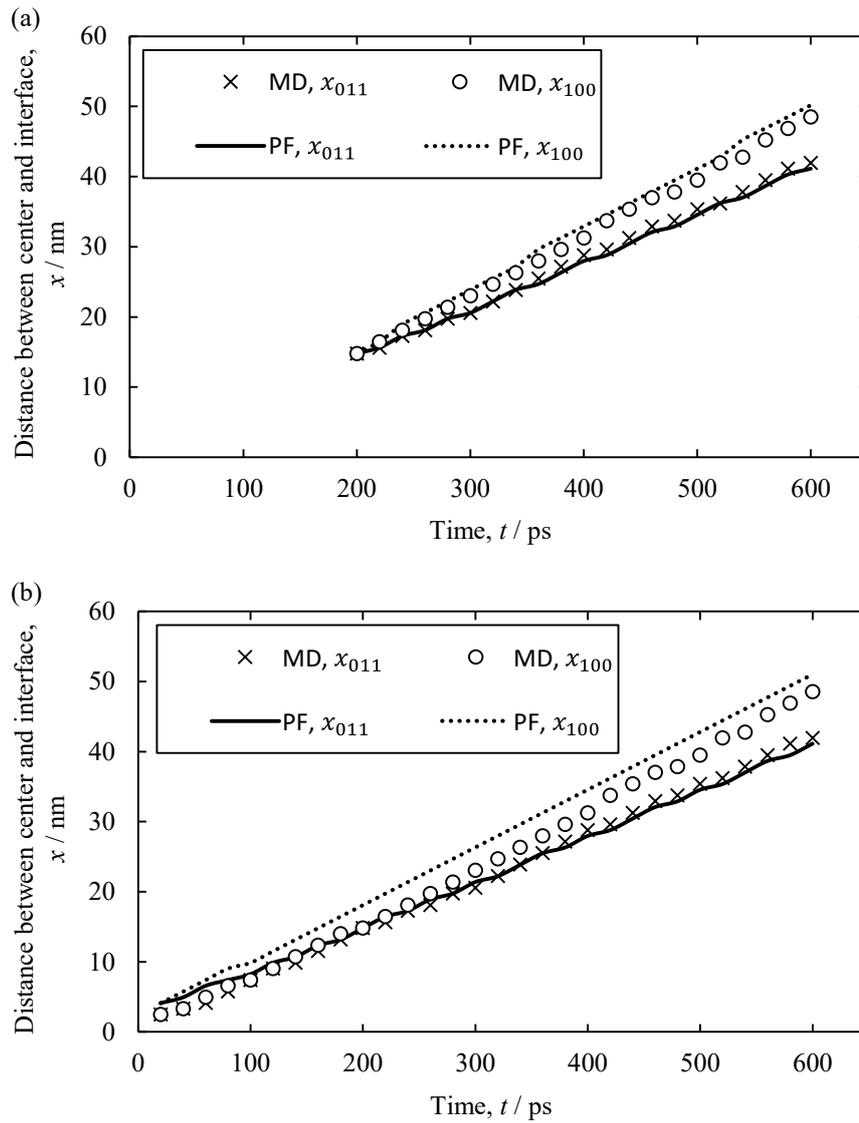


Fig. 4.13 Time dependence of distance between center of the system and solid-liquid interface when initial condition was (a) observation data at 200 ps from solidification starting obtained from molecular dynamics solidification simulation, (b) solid having a radius of 2 nm in the center of liquid. Lines shows the results of phase field solidification simulation with estimated interfacial properties, and plots shows observation data obtained from molecular dynamics solidification simulation.

第5章 凝固伝熱解析におけるパラメータ推定

5.1 緒言

鋳物と鋳型を含めた系について、金属がどのように凝固するのか予測するために凝固伝熱解析が用いられている。系全体の温度変化を凝固伝熱解析によってシミュレートすることで、凝固欠陥の発生位置を予測し、適切な鋳造条件を設定することができる。また、鋼の連続鋳造ではまず筒状の鋳型に溶湯を流し込み、外側を凝固させて凝固シェルを形成させる。そして溶湯の内部はまだ凝固しないまま鋳型から排出され、ロール部を通過する間に全体が凝固する。鋳型から排出されるまでにシェルが十分な厚さまで成長しなかった場合、シェルが破れ、歩留まりが悪くなるばかりでなく、重大な事故につながる可能性もある。したがって、鋳型内でどのように凝固が進行するのか予測することが非常に重要である。

しかし、鋳造の凝固伝熱解析に不可欠となる鋳型-溶湯間の熱伝達係数は決定が難しいのが現状である。熱伝達係数は伝熱解析の結果と測定された温度が一致するように試行錯誤によって決定されることが多いが、そうして求められた熱伝達係数は一般に大きな誤差を含んでいる。また、熱伝達係数は一般に時間変化する値であるが、その時間変化を自動的に推定する方法は開発されていない。したがって、事前に熱伝達係数の時間変化を表す近似式を仮定する必要がある。しかし、常に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。更に、熱伝達係数は合金系や鋳造条件および冷却条件、鋳型や鋳物の表面状態など、様々な要因によって変化するため、個々の状況についてそれぞれ決定する必要がある。

また、流動解析や溶質拡散方程式を用いずに凝固伝熱解析のみによって凝固過程を予測する場合、溶湯の熱伝導率にはその流動などの影響を含んだみかけの値を用いる必要がある。しかし、そのような見かけの熱伝導率は熱伝達係数と同じく合金系や鋳造条件に依存する値であり、高精度な決定が難しいばかりではなく、解析対象ごとに逐次決定しなくてはならないという多大な手間も必要とする。

したがって、鋳型-溶湯間の熱伝達係数や溶湯の熱伝導率の高精度かつ簡便な推定方法が必要である。また、その方法は熱伝達係数の時間変化の近似式を仮定することなく、自動的に推定可能であることが望ましい。本研究ではデータ同化に基づいて、みかけの熱伝導率や鋳型-溶湯間の熱伝達係数の推定方法の開発を試みた。データ同化の方法では、シミュレーションモデルに含まれる不確かさをノイズとしてモデルに導入し、システムの状態を確率分布として捉えてシミュレーションを行う。このようにすることで、近似を多く含むシミュレーションモデルでも観測データを再現するようなパラメータを推定することができる。また、決定論的なシミュレーションモデルとは異なり、解の多様性を保ったままシミュレーションを行うことができるため、熱伝達係数の時間依存を自動的に推定可能であることが期待できる。

5.2 計算方法

5.2.1 金型鑄造のパラメータ推定

金型鑄造を対象として、溶湯の見かけの熱伝導率と鑄型－溶湯間の熱伝達係数の推定に対するデータ同化の有効性を検証した。このとき、データ同化の方法としてアンサンブルカルマンフィルタを採用した。観測データは鑄型や溶湯から得られる冷却曲線を用いた。温度のみから熱伝導率や熱伝達係数を推定することができれば、汎用性と拡張性の高いパラメータ推定方法として様々な鑄造プロセスへの応用が期待できる。更に、本研究では熱伝達係数の時間変化に近似式を仮定せず、データ同化によって自動的に推定できるか検討した。また、データ同化による熱伝導率と熱伝達係数の同時推定が可能かどうかについても検証を行った。

まず、凝固伝熱解析のモデルを示す。本研究では鑄型と溶湯を含む一次元の熱伝導モデルを用いた。Fig. 5.1 に解析領域の模式図を示す。凝固が左右対称に進行し、鑄型の高さ方向および紙面垂直方向の長さが凝固の進行方向よりも十分に大きいと仮定すると、解析領域を一次元に限定することが可能である。右側の境界条件にミラー境界条件を採用することで、鑄型の対称性を表現した。左側の境界は温度が一定である空気との間に熱伝達境界条件が成立するものとした。

凝固伝熱解析は第 2 章で示した熱伝導方程式と熱伝達式を用いて行った。以下にその式を示す。

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (5.1)$$

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + L \frac{\partial f_s}{\partial t} \quad (5.2)$$

$$q = h(T_{\text{alloy}} - T_{\text{mold}}) \quad (5.3)$$

ここで、 T は温度、 t は時間、 f_s は固相率、 ρ は密度、 C_p は比熱、 k は熱伝導率、 L は潜熱、 q は鑄型－溶湯間を通過する熱流束、 h は鑄型－溶湯間の熱伝達係数、 T_{alloy} は鑄型－溶湯界面の溶湯側の温度、 T_{mold} は鑄型側の温度である。式(5.1)は鑄型および溶湯の固相、式(5.2)は液相、式(5.3)は鑄型－溶湯界面の熱伝導および熱伝達を表す式である。潜熱項は等価比熱法によって処理した。表 5.1 に入力パラメータを示す。溶湯のパラメータには Al-4.0 wt. % Cu、鑄型には鑄鉄を想定した。

次に観測データについて説明する。金型鑄造のパラメータ推定では、実際に測定された温度ではなく、溶湯の熱伝導率と鑄型－溶湯間の熱伝達係数にあらかじめ真の値を仮定し、その値を用いて凝固伝熱解析を行い、結果として得られた冷却曲線を観測データとして用いた。これは第 3 章でも説明した双子実験である。双子実験はデータ同化の方法が推定に対して有効であるかどうか検証するためによく用いられる方法である。観測データを作成するとき、凝固伝熱解析は 30 秒間の凝固について行い、その 30 秒の間に温度は鑄型や溶湯の中の数点から 0.1 秒間隔で測定されたものとした。

アンサンブルカルマンフィルタによって推定を行う際には、観測ノイズの標準偏差を σ_T としてフィルタリングを行った。フィルタリングの後、粒子の鋳型-溶湯間熱伝達係数と溶湯の熱伝導率をそれぞれ平均し、その平均値をその時刻における推定値とした。その後、各粒子の熱伝達係数にシステム・ノイズを与えた。システム・ノイズは平均0、標準偏差 σ_s の正規分布に従う乱数とした。ここで、パラメータが熱伝導率であれば σ_s はその時刻の熱伝導率の推定値の $\sigma_k\%$ 、熱伝達係数であれば $\sigma_h\%$ とした。

5.2.2 連続鋳造のパラメータ推定

5.2.1 節で説明した金型鋳造のパラメータ推定を行い、データ同化の有効性を検証した後、対象を連続鋳造に拡張し、連続鋳造の鋳型-溶湯間の熱伝達係数の推定を行った。本研究では、文献[2]から抽出したデータを用いて連続鋳造の鋳型-溶湯間の熱伝達係数を推定した。このとき、データ同化の方法には粒子フィルタを用いた。最初に双子実験によって推定に対する粒子フィルタの有効性を確認した。その後、鋳型から得られた実際の温度を観測データとして熱伝達係数の推定を行った。

まず、文献[2]から得られたデータについて説明する。連続鋳造機の鋳型の模式図を Fig. 5.2 (a) に示す。連続鋳造では鋳型の上部から溶湯を流し込み、鋳型内で凝固シェルを形成させて下部から排出する。また、Fig. 5.2 (b) に鋳型の xz 面の断面図の左半分を示す。これが凝固伝熱解析の解析領域である。鋳型の x 方向の長さに比べて y 方向の長さが十分大きいとき、解析領域は xz 面に限定することができる。文献[2]では、鋳型上端から 45 mm、150 mm、250 mm、350 mm、450 mm、550 mm、700 mm の鋳型内の点で x 方向の熱流束 q を測定した結果が報告されている。また、凝固シェル厚さを求めるための式も報告されている。熱流束と凝固シェルの厚さを用いて、熱流束と温度勾配の関係式 $q = k_{shell}(dT/dx)$ から、凝固シェルの外側（鋳型側）の温度 T_{alloy} を算出した。ここで、 k_{shell} は凝固シェルの熱伝導率である。このとき、凝固シェルの内側（溶湯側）の温度は液相線温度であるとした。また、鋳型の外側が水冷されており、298 K で一定であると仮定して、熱流束 q と鋳型の熱伝導率を用いて鋳型の内表面から 13 mm 離れた鋳型内の温度 T_c を算出した。そして、鋳型内の温度 T_c と熱流束 q の値、鋳型の熱伝導率を用いて鋳型内表面の温度 T_{mold} を算出した。本研究では T_c 、 T_{mold} 、 T_{alloy} を観測データ、これらの温度が得られた点を観測点と呼ぶ。また、 T_c 、 T_{mold} 、 T_{alloy} を再現できるような鋳型-溶湯間の熱伝達係数を決定し、双子実験で用いる熱伝達係数の真の値とした。

次に凝固伝熱解析について説明する。Fig. 5.2 (b) は凝固伝熱解析の解析領域である。鋳造が定常状態で進行するとき、解析領域は一次元に限定することができる。Fig. 5.2 (b) 内に破線で示した一次元の解析領域について凝固伝熱解析を行うことで、連続鋳造の引き抜きを考慮することができる。また、引抜き速度は $3.0 \text{ m} \cdot \text{min}^{-1}$ とした。このとき、一次元領域に注目すると、凝固開始から 0.9 秒、3.0 秒、5.0 秒、7.0 秒、9.0 秒、11.0 秒、14.0 秒で観測点を

通過することになる。すなわち、これらの時刻で観測データが得られたとみなすことができる。このような温度の時間変化を観測データとして、鋳型 - 溶湯間熱伝達係数の推定を行った。

凝固伝熱解析は式(5.1)、(5.2)、(5.3)に示す式を用いて行った。潜熱の処理には等価比熱法を用いた。入力パラメータを表 5.2 に示す。ここで、 k_{liquid} は凝固していない溶湯の熱伝導率である。凝固していない溶湯の熱伝導率 k_{liquid} と鋳型の熱伝導率 k_{mold} は、伝熱解析の結果が測定温度と一致するように調整した値である。すなわち、凝固していない溶湯の熱伝導率 $k_{liquid} = 170 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ は流動の影響を含んだ見かけの熱伝導率である。

次にフィルタリングについて説明する。連続鋳造のパラメータ推定では、測定温度を観測データとして、粒子フィルタによって鋳型-溶湯間の熱伝達係数を推定した。粒子 i の尤度は以下のような式で計算した。

$$\lambda_t^i \propto \exp\left[-\frac{1}{2}(\mathbf{T}^{t,ob} - \mathbf{T}^{t,i})' \Sigma^{-1} (\mathbf{T}^{t,ob} - \mathbf{T}^{t,i})\right] \quad (5.4)$$

$$\Sigma = \begin{bmatrix} \sigma_T & & \\ & \ddots & \\ & & \sigma_T \end{bmatrix} \quad (5.5)$$

ここで $\mathbf{T}^{t,ob}$ は時刻 t における観測データを並べた行列である。一方 $\mathbf{T}^{t,i}$ は、観測点に相当する位置の粒子 i の温度計算結果を並べた行列である。また、 σ_T は観測ノイズの標準偏差である。式(5.4)によって計算された尤度に基づいてリサンプリングを行った後、各粒子の鋳型-溶湯間熱伝達係数を平均し、その平均値を時刻 t における推定値とした。その後、各粒子の熱伝達係数にシステム・ノイズを与えた。システム・ノイズは平均 0、標準偏差 σ_s の正規分布に従う乱数とした。 σ_s はその時刻における熱伝達係数の推定値の 10%とした。

5.3 金型鋳造のパラメータ推定の結果

5.3.1 鋳型-溶湯間の熱伝達係数の推定

まずアンサンブルカルマンフィルタで時間変化しない熱伝達係数のみを推定する場合について、適切な推定条件の検討を行った。このとき、熱伝達係数は $600 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ で一定とした。観測ノイズの標準偏差 σ_T は 1 K、システム・ノイズの標準偏差は $\sigma_h = 10\%$ とした。熱伝導率は $87 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ で既知とし、各粒子の熱伝達係数は 0 から $6000 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ の間から乱数によって決定した。粒子数は 128 とした。

Fig. 5.3(a)に熱伝達係数の推定値の時間変化を示す。このとき、観測データは 1 点から得られたものを用いた。観測データの観測点は鋳型-溶湯界面から 1 mm 離れた溶湯内の点である。推定値は真の値に収束しなかった。また、点線とプロットの距離は粒子の分布の標準偏差を示している。推定が進むと粒子の分布が大きくなっていることがわかる。したがって、このとき熱伝達係数は推定できなかったと言える。次に、Fig. 5.3 (b)に 2 点の観測点から得

られた観測データを推定に用いた場合の推定結果を示す。このとき、観測点は鋳型と溶湯の中に1点ずつあるものとした。また、ここで鋳型内の観測点と鋳型-溶湯界面までの距離を x_{mold} 、溶湯内の観測点と鋳型-溶湯界面までの距離を x_{alloy} とする。Fig. 5.3 (b)は $x_{alloy} = x_{mold} = 20 \text{ mm}$ の場合に得られた結果である。推定値は推定開始後すぐに真の値へ収束した。したがって、鋳型内と溶湯内にそれぞれ1点ずつ観測点を置くことで、アンサンブルカルマンフィルタによって熱伝達係数を推定可能であることが示された。

次に、鋳型内と溶湯内のそれぞれ1点に観測点を置いたとき、観測点の位置によって、推定値が収束するために要する時間がどのように変化するか調査した。ここでは、推定値と真の値の誤差が10%以内となった時間を収束に要する時間とした。Fig. 5.4にその結果を示す。 x_{alloy} または x_{mold} が5 mm以内であるとき、収束に要する時間は非常に短いことがわかった。

また、 x_{alloy} と x_{mold} の大きさが推定精度に与える影響を調査した。0.1秒ごとに推定を行い、凝固開始から15秒後から30秒後までの推定値を平均したものを推定結果とした。結果をFig. 5.5に示す。同条件で5回推定を行い、推定結果の平均値をプロット、最小値と最大値をエラーバーで示した。凝固開始から15秒後以降の推定値を平均した場合には、観測点の位置に関わらず熱伝達係数を高精度に推定することができた。

σ_T および σ_h が推定精度に及ぼす影響について調査した結果をFig. 5.6に示す。このとき $x_{alloy} = x_{mold}$ である。熱伝達係数は σ_T に関わらず高精度に推定できた。一方、 $x_{alloy} = x_{mold} = 30 \text{ mm}$ かつ $\sigma_h = 20\%$ のとき、著しく精度が低下した。

また、熱伝達係数の真の値によってどのように推定精度が変化するか調査した。結果をFig. 5.7と5.8に示す。それぞれ熱伝達係数の真の値が $3000 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ 、 $120 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ の場合である。どちらも x_{mold} および x_{alloy} が小さい値であるとき、高精度に推定可能であった。

5.3.2 時間変化する鋳型-溶湯間熱伝達係数の推定

鋳造における鋳型-溶湯間の熱伝達係数は、一般に時間変化する値である。従来の熱伝達係数の決定方法では、この時間変化にあらかじめ仮定をおく必要がある場合が多い。本研究では、事前の仮定をせずに熱伝達係数の時間変化の推定を試みた。

熱伝達係数が $h(t) = h_0 t^{-0.5} \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ である場合の推定結果の例をFig. 5.9に示す。このとき、観測ノイズの標準偏差 σ_T は1 K、システム・ノイズの標準偏差は $\sigma_h = 10\%$ とした。熱伝導率は $87 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ で既知とし、粒子数は128とした。観測点は鋳型と溶湯内にそれぞれ1点ずつとし、それぞれの鋳型-溶湯界面からの距離は $x_{alloy} = x_{mold} = 1 \text{ mm}$ とした。実線と点線の距離は粒子の分布の標準偏差である。 h_0 の値に関わらず、推定値の時間変化は真の値によく一致した。したがって、アンサンブルカルマンフィルタによって熱伝達係数の時間変化を推定可能であることが示された。

時間変化する熱伝達係数の推定精度は、以下の式に示す *RRMSE* を用いて評価した。

$$RRMSE [\%] = 100 \times \sqrt{\frac{1}{n} \sum_t \frac{(h^{t,true} - h^{t,estimation})^2}{h^{t,true}{}^2}} \quad (5.6)$$

ここで n はフィルタリングを行った回数、 $h^{t,true}$ は時刻 t における熱伝達係数の真の値、 $h^{t,estimation}$ は推定値である。 x_{alloy} および x_{mold} が推定精度に及ぼす影響を調査した結果を Fig. 5.10 に示す。熱伝達係数が時間変化しない場合と同様に、 x_{alloy} および x_{mold} が小さいほど推定精度が向上した。

5.3.3 溶湯の熱伝導率の推定

熱伝達係数が既知であるとして、熱伝導率をアンサンブルカルマンフィルタによって推定した。このとき、熱伝導率の真の値は $87 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ とした。また、観測点が 2 点以下であるとき推定ができなかったため、観測点は 3 点用いた。1 点は鋳型内、2 点は溶湯内にあるものとし、溶湯内の 2 点の観測点は 5 mm 離れているものとした。粒子数は 128、観測ノイズの標準偏差 σ_T は 1 K 、システム・ノイズの標準偏差は $\sigma_k = 10\%$ とした。熱伝達係数は $600 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ で一定であるとし、各粒子の熱伝導率は 0 から $150 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ の間から乱数によって決定した。また、 0.1 秒ごとに推定を行い、凝固開始から 15 秒後から 30 秒後までの推定値を平均したものを推定結果とした。

Fig. 5.11 に x_{alloy} および x_{mold} が推定精度に及ぼす影響を調査した結果を示す。ここで、 x_{alloy} は鋳型に近い方の観測点と鋳型－溶湯界面との距離である。熱伝導率は $x_{alloy} = 1 \text{ mm}$ であるとき高精度に推定可能であった。また、 σ_T および σ_k が推定精度に与える影響を Fig. 5.12 に示す。熱伝導率をアンサンブルカルマンフィルタによって推定する場合、 σ_k は 20% よりも小さい値である必要があることが示された。更に、熱伝導率の真の値によってどのように推定精度が変化するか調査した。結果を Fig. 5.13 に示す。(a) は熱伝達係数の真の値が $44 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 、(b) は $130 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ の場合である。 $130 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ の場合には高精度な推定を行うことができなかった。Fig. 5.14 に熱伝導率が $130 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ の場合に σ_T が推定精度に与える影響を示した。熱伝導率が $130 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ であるときには、 $\sigma_T = 0.1 \text{ K}$ のとき高精度な推定を行うことができた。これは、熱伝導率が大きいとき、熱伝導率の違いによって生じる観測データである冷却曲線の違いが小さくなるためである。

5.3.4 溶湯の熱伝導率と鋳型－溶湯間熱伝達係数の同時推定

熱伝導率の真の値を $87 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 、熱伝達係数の真の値を $h(t) = 3000t^{-0.5} \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ として、アンサンブルカルマンフィルタによって 2 つのパラメータの同時推定を行った。 0.1 秒ごとに推定を行い、熱伝導率は凝固開始から 15 秒後から 30 秒後までの推定値を平均したものを推定結果とした。一方、熱伝達係数は式(5.6)によって推定精度を評価した。観測ノイズの

標準偏差 σ_T は1 K、システム・ノイズの標準偏差は $\sigma_k = 10\%$ 、 $\sigma_h = 20\%$ とした。粒子数は128とした。各粒子の熱伝導率は0から $150 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ の間、熱伝達係数は0から $6000 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ の間から乱数によって決定した。観測点は4点とし、鋳型内と溶湯内にそれぞれ2点ずつあるものとした。溶湯内の観測点はそれぞれ鋳型-溶湯界面から1 mm および 6 mm 離れた点にあるものとした。一方、鋳型内の観測点は互いに5 mm 離れており、鋳型-溶湯界面に近い方の観測点と鋳型-溶湯界面の距離は x_{mold} であるとした。

x_{mold} が推定精度に与える影響を調査した結果を Fig. 5.15 に示す。アンサンブルカルマンフィルタによって、熱伝達係数の時間変化と熱伝導率を同時に推定することができた。また、 x_{mold} が小さい値であるほど推定精度が向上した。

以上より、アンサンブルカルマンフィルタによって、鋳型や溶湯内から得られた冷却曲線のみから溶湯の熱伝導率および鋳型-溶湯間の熱伝達係数を同時に推定できることが示された。また、事前の仮定をすることなく熱伝達係数の時間変化が推定可能であった。

5.4 連続鋳造のパラメータ推定の結果

連続鋳造のパラメータ推定では、鋳型-溶湯間の熱伝達係数に着目して推定を行った。実際の連続鋳造機の鋳型で得られた冷却曲線から、粒子フィルタによって熱伝達係数を推定した。

5.4.1 粒子フィルタの鋳型-溶湯間熱伝達係数推定に対する有効性の検証

まず、粒子フィルタの熱伝達係数推定に対する有効性を検証するために双子実験を行った。熱流束の測定結果から算出した鋳型-溶湯間の熱伝達係数の時間変化を Fig. 5.16 に示す。そして、算出した熱伝達係数を用いて行った凝固伝熱解析の結果を Fig. 5.17 に示す。プロットが T_c 、 T_{mold} および T_{alloy} 、点線が凝固伝熱解析の結果である。両者はよく一致した。 T_c 、 T_{mold} および T_{alloy} と凝固伝熱解析の結果の誤差は、それぞれ3.2%、4.2%、3.0%であった。なお、誤差はRRMSEによって評価した。

$$RRMSE = 100 \times \sqrt{\frac{1}{N} \sum_t \frac{(T_t^{ob} - T_t^{cal})^2}{T_t^{ob^2}}} \quad (5.7)$$

ここで T_t^{ob} は時刻 t の観測データ、 T_t^{cal} はそれに該当する位置における凝固伝熱解析の結果である。 N は温度を測定した回数であり、 $N=7$ である。

また、観測データには観測ノイズが含まれている。考慮すべき観測ノイズの大きさを検討するため、伝熱解析の結果にノイズを与えて観測データと比較した。ノイズは平均0、標準偏差 σ_T の正規分布に従う乱数とした。比較した結果を Fig 5.18 に示す。(a)は $\sigma_T = 1 \text{ K}$ 、(b)は $\sigma_T = 5 \text{ K}$ 、(c)は $\sigma_T = 10 \text{ K}$ の場合である。黒塗りのプロットが観測データである。また、実線は凝固伝熱解析の結果であり、白抜きのプロットが凝固伝熱解析の結果にノイズを与

えたものである。 $\sigma_T = 5 \text{ K}$ および $\sigma_T = 10 \text{ K}$ のとき、観測ノイズを与えた伝熱解析の結果は測定温度とよく一致した。したがって、推定において観測ノイズの標準偏差は $\sigma_T = 5 \text{ K}$ または $\sigma_T = 10 \text{ K}$ とした。

Fig. 5.16 の熱伝達係数を真の値として伝熱解析を行い、その結果に観測ノイズを与えたものを観測データとした。そして熱伝達係数が不明であるものとして粒子フィルタによって熱伝達係数を推定した。粒子数は 1000 とし、粒子の熱伝達係数の初期値は 0 から $10000 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ の範囲から乱数で決定した。このとき、粒子数は推定精度と計算コストのバランスを考慮して決定した。鋳型内表面から 13 mm 離れた鋳型内の点と、鋳型内表面の合計 2 点から観測データが得られているとき、推定した結果を Fig. 5.19 に示す。(a)は $\sigma_T = 5 \text{ K}$ である場合、(b)は $\sigma_T = 10 \text{ K}$ である場合の結果である。同条件で 5 回推定を行い、その 5 回の推定結果をそれぞれ異なるプロットで示した。推定を繰り返すことで、全てのプロットが熱伝達係数の真の値とよく一致していることがわかる。したがって、粒子フィルタで連続鋳造における熱伝達係数を推定可能であることが示された。

5.4.2 連続鋳造の鋳型－溶湯間熱伝達係数の推定

観測点を 1 点のみ用いた場合と、2 点用いた場合の 2 つの場合について鋳型 - 溶湯間熱伝達係数を推定した。1 点の場合、観測点は鋳型内表面から 13 mm 離れた鋳型内の点、2 点の場合は鋳型内表面から 13 mm 離れた鋳型内部の点と鋳型内表面とした。粒子数は 1000 とし、それぞれの粒子の熱伝達係数の初期値は 0 から $10000 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ の範囲から乱数で決定した。観測ノイズの標準偏差は $\sigma_T = 5 \text{ K}$ または $\sigma_T = 10 \text{ K}$ とした。

推定結果を Fig. 5.20 に示す。(a),(b)は観測点が 1 点である場合の推定結果であり、それぞれ $\sigma_T = 5 \text{ K}$ および $\sigma_T = 10 \text{ K}$ である。一方、(c),(d)は 2 点の観測点を用いた場合の、それぞれ $\sigma_T = 5 \text{ K}$ および $\sigma_T = 10 \text{ K}$ のときの推定結果である。次に、熱伝達係数の推定精度を検証するため、推定結果を用いて伝熱解析を行った。まず、Fig. 5.20 (a), (b)で示した熱伝達係数の推定結果を用いて伝熱解析を行った。結果を Fig. 5.21 に示す。実線は $\sigma_T = 5 \text{ K}$ で推定を行った場合の熱伝達係数の推定結果を用いた伝熱解析の結果、破線は $\sigma_T = 10 \text{ K}$ の場合の推定結果を用いた結果である。(a)は鋳型内表面から 13 mm 離れた鋳型内の点、(b)は鋳型の内表面、(c)は凝固シェルの外側表面における温度変化である。プロットで示したのは観測データである。凝固伝熱解析の結果と測定温度はあまりよい一致を見せなかった。また、凝固伝熱解析の結果と測定温度の誤差を以下の式で示す *RRMSE* で評価した。

$$RRMSE = 100 \times \sqrt{\frac{1}{N} \sum_t \frac{(T^{t,ob} - T^{t,cal})^2}{T^{t,ob^2}}} \quad (5.8)$$

ここで N は推定を行った回数で、 $N = 7$ である。 $T^{t,ob}$ は時刻 t の観測データ、 $T^{t,cal}$ は時刻 t の伝熱解析の結果である。それぞれの伝熱解析の結果と実際の測定温度の誤差を表 5.3 に示

す。凝固シェルの外側表面温度と鋳型の内表面では、鋳型内の点よりも誤差が大きくなったことがわかる。これは、鋳型内の点を観測点とし、そこから得られた観測データのみを推定に用いたためである。

次に、Fig. 5.2 (c), (d)で示した熱伝達係数の推定結果を用いて凝固伝熱解析を行った。これは観測点が2点である場合の推定結果である。凝固伝熱解析の結果をFig. 5.22に示す。(a)は鋳型内表面から13 mm離れた鋳型内の点、(b)は鋳型の内表面、(c)は凝固シェルの外側表面における温度変化である。伝熱解析の結果と測定温度は、どの点においてもよく一致した。特に、推定に用いていない凝固シェル外側表面の温度変化も再現することができた。それぞれの伝熱解析の結果と実際の測定温度の誤差を表5.4に示す。誤差は全て10%以内であった。なお、Fig. 5.17では熱流束から決定した熱伝達係数を用いた伝熱解析の結果を示したが、このとき観測データとの誤差は表5.4に示した結果よりもわずかに小さかった。ただし、今回粒子フィルタによるフィルタリングを行ったのは全解析時間の中でわずか7回である。粒子フィルタは観測データを取り込むことでシミュレーションを修正し、パラメータを推定する方法であるので、フィルタリングの回数を増やすことで推定精度の向上が期待できる。

5.5 結言

アンサンブルカルマンフィルタによって金型鋳造の熱伝導率と熱伝達係数の同時推定を行った。また、粒子フィルタによって連続鋳造における鋳型-溶湯間の熱伝達係数の推定を行った。金型鋳造のパラメータ推定では、アンサンブルカルマンフィルタによって温度のみから熱伝導率と熱伝達係数を高精度に推定可能であることが示された。また、連続鋳造では鋳型内と鋳型内側表面の2点から得られた測定を観測データとして用いることで、温度のみから熱伝達係数が推定できることが示された。

アンサンブルカルマンフィルタおよび粒子フィルタ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することができた。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推定することができた。これらは従来の方法にはない特長である。

また、粒子フィルタとアンサンブルカルマンフィルタはどちらもモンテカルロ法に基づくデータ同化の方法であり、非線形システムを扱う場合、非常に有効な手段である。アンサンブルカルマンフィルタはより次元数の高い問題への応用に適しており、一方で粒子フィルタはより実装が容易な方法であることが知られている。アンサンブルカルマンフィル

タと粒子フィルタ両方のパラメータ推定に対する有効性が示されたことで、より多様な鑄造プロセスにおける入力パラメータの推定が可能となることが期待できる。

参考文献

- [1] 大中逸雄：コンピュータ伝熱・凝固解析入門，(1985) 丸善株式会社
- [2] M. Hanao, M. Kawamoto, A. Yamanaka, *ISIJ International*, 49 (2009) 365.
- [3] 日本学術振興会製鋼第19委員会凝固プロセス研究会：鉄鋼の凝固，松香堂書店(2015).

表 5.1 金型鑄造の凝固伝熱解析の入力パラメータ

パラメータ	値
熱伝導率 (鑄型) , k_m	65.4 Wm ⁻¹ K ⁻¹ [1]
固相線温度, T_s	905 K
液相線温度, T_l	924 K
鑄型初期温度, T_{surf}	320 K
溶湯初期温度, T_{ini}	950 K
鑄型の初期温度, $T_{mold,initial}$	298 K
比熱 (溶湯) , $C_{p, alloy}$	1.1 Jg ⁻¹ K ⁻¹
比熱 (鑄型) , $C_{p, mold}$	0.5 Jg ⁻¹ K ⁻¹
密度 (溶湯) , ρ_{alloy}	7.0×10 ⁶ gm ⁻³ [1]
密度 (鑄型) , ρ_{mold}	8.9×10 ⁶ gm ⁻³
タイムステップ, dt	0.1 s
格子点間隔, dx	0.001 m

表 5.2 連続鑄造の凝固伝熱解析の入力パラメータ

パラメータ	値
熱伝導率 (凝固シェル) , k_{shell}	33 Wm ⁻¹ K ⁻¹
熱伝導率 (溶湯) , k_{alloy}	170 Wm ⁻¹ K ⁻¹
熱伝導率 (鑄型) , k_m	400 Wm ⁻¹ K ⁻¹
固相線温度[3], T_s	1771 K
液相線温度, T_l	1801 K
鑄型初期温度, T_{surf}	320 K
溶湯初期温度, T_{ini}	1830 K
比熱 (溶湯) , $C_{p, alloy}$	0.461 Jg ⁻¹ K ⁻¹
比熱 (鑄型) , $C_{p, mold}$	0.38 Jg ⁻¹ K ⁻¹
密度 (溶湯) , ρ_{alloy}	7.83×10 ⁶ gm ⁻³
密度 (鑄型) , ρ_{mold}	8.9×10 ⁶ gm ⁻³
タイムステップ, dt	0.002 s
格子点間隔, dx	0.001 m

表 5.3 観測点が 1 点の場合の熱伝達係数の推定結果を用いた伝熱解析と測定温度の誤差

	熱伝達係数を推定する際の σ_T	
	5 K	10 K
鋳型内部	6.8 %	6.7 %
鋳型内表面	14.7 %	14.1 %
凝固シェル外側	13.0 %	12.6 %

表 5.4 観測点が 2 点の場合の熱伝達係数の推定結果を用いた伝熱解析と測定温度の誤差

	熱伝達係数を推定する際の σ_T	
	5 K	10 K
鋳型内部	5.2 %	5.1 %
鋳型内表面	6.8 %	6.2 %
凝固シェル外側	3.9 %	3.4 %

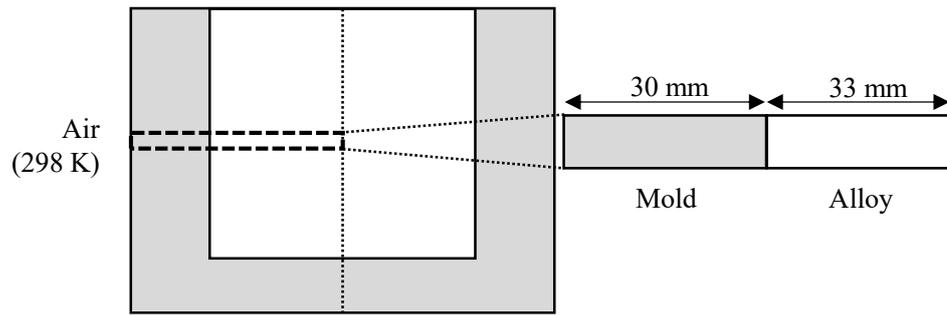


Fig. 5.1 Whole area of the mold and the alloy and one-dimensional calculation area for mold casting.

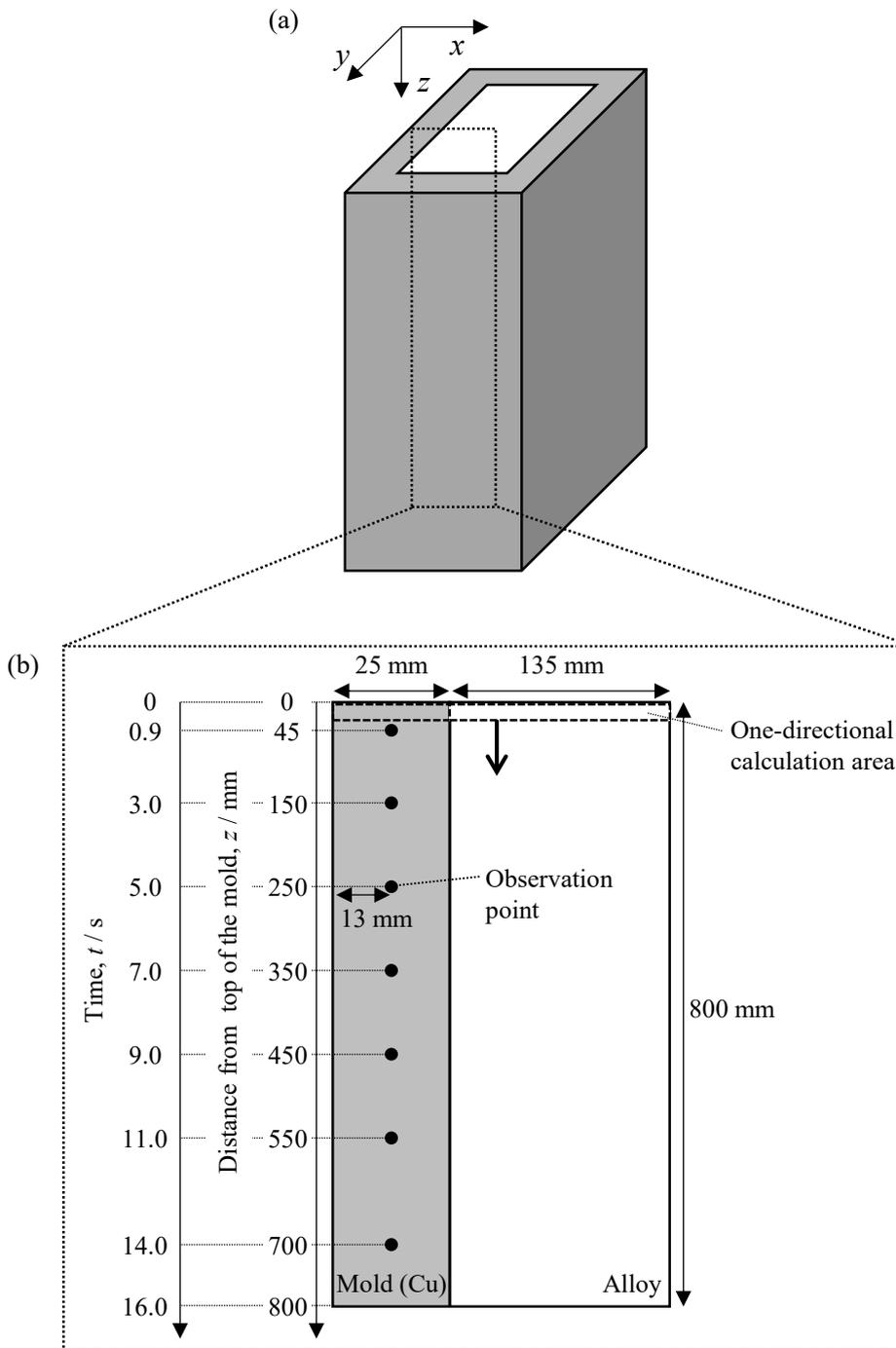


Fig. 5.2 Schematic illustration of (a) whole area of the mold for continuous casting and (b) calculation area for heat conduction solidification simulation.

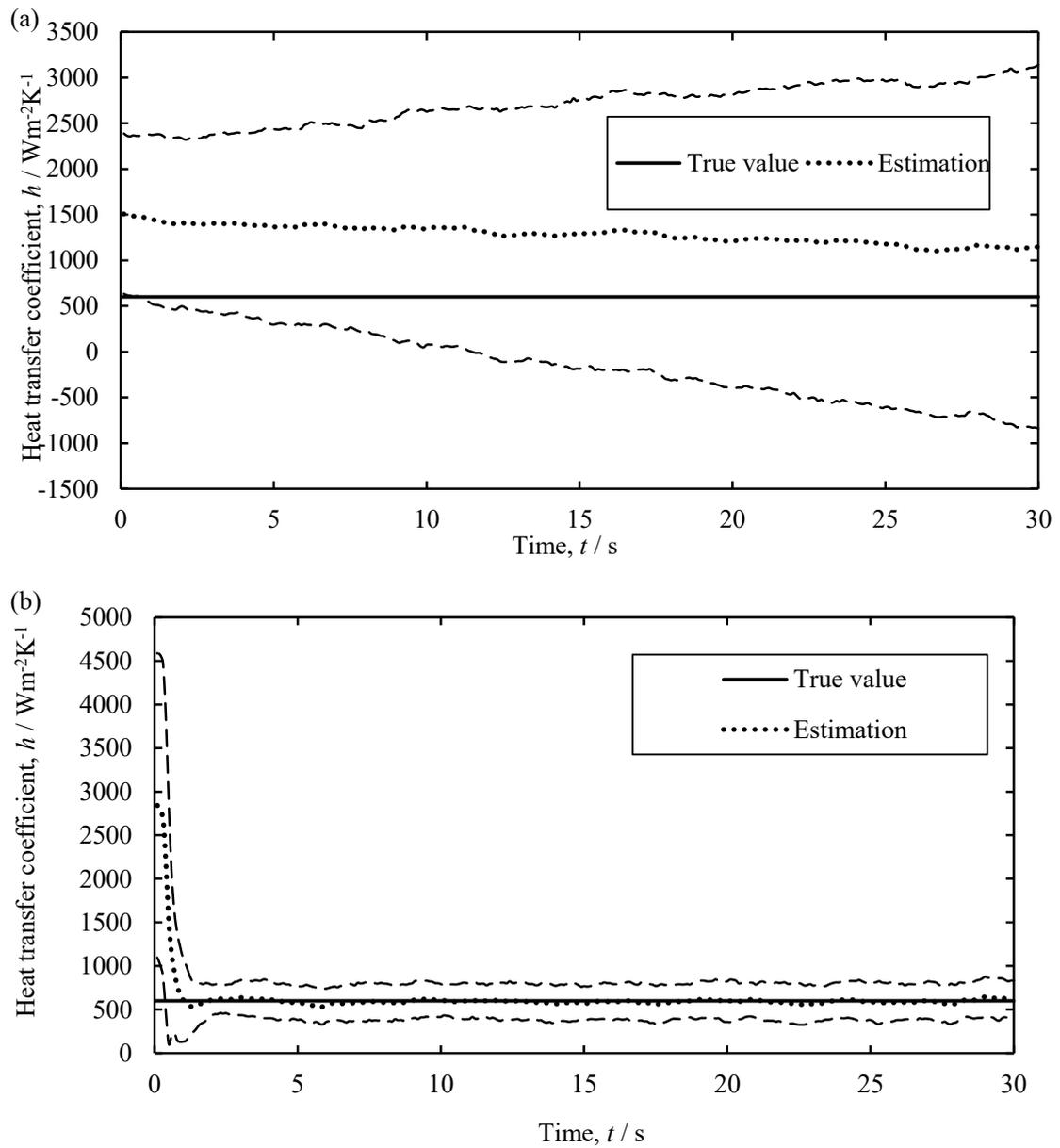


Fig. 5.3 Time dependence of estimated heat transfer coefficient. Heat transfer coefficient was estimated with observation data from (a) one observation point in the alloy 1 mm away from the mold, (b) two observation points in both the alloy and mold at 20 mm away from the mold/alloy boundary.

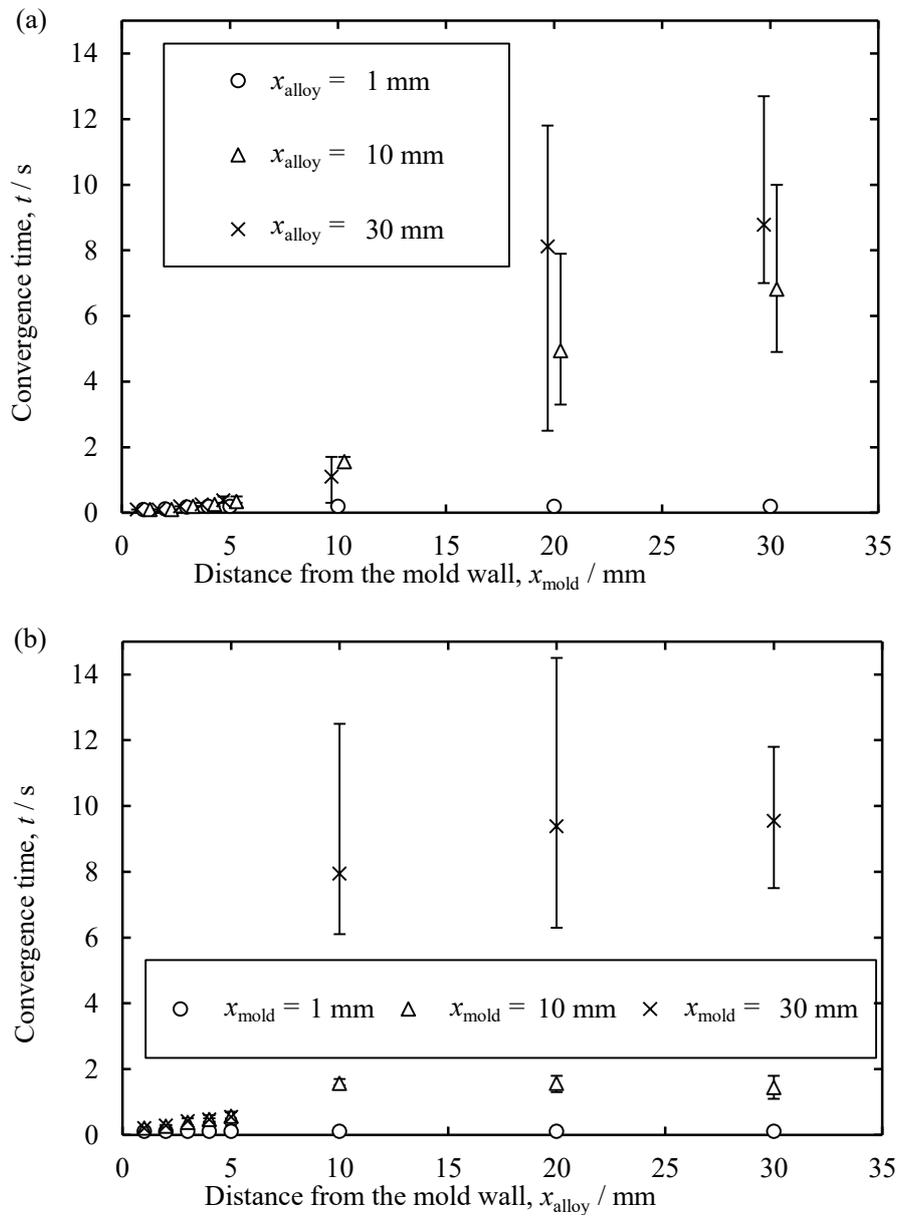


Fig. 5.4 Dependence of convergence time for estimation result on the position of observation points. (a) The dependence on x_{mold} for three different value of x_{alloy} , (b) the dependence on x_{alloy} for three different value of x_{mold} .

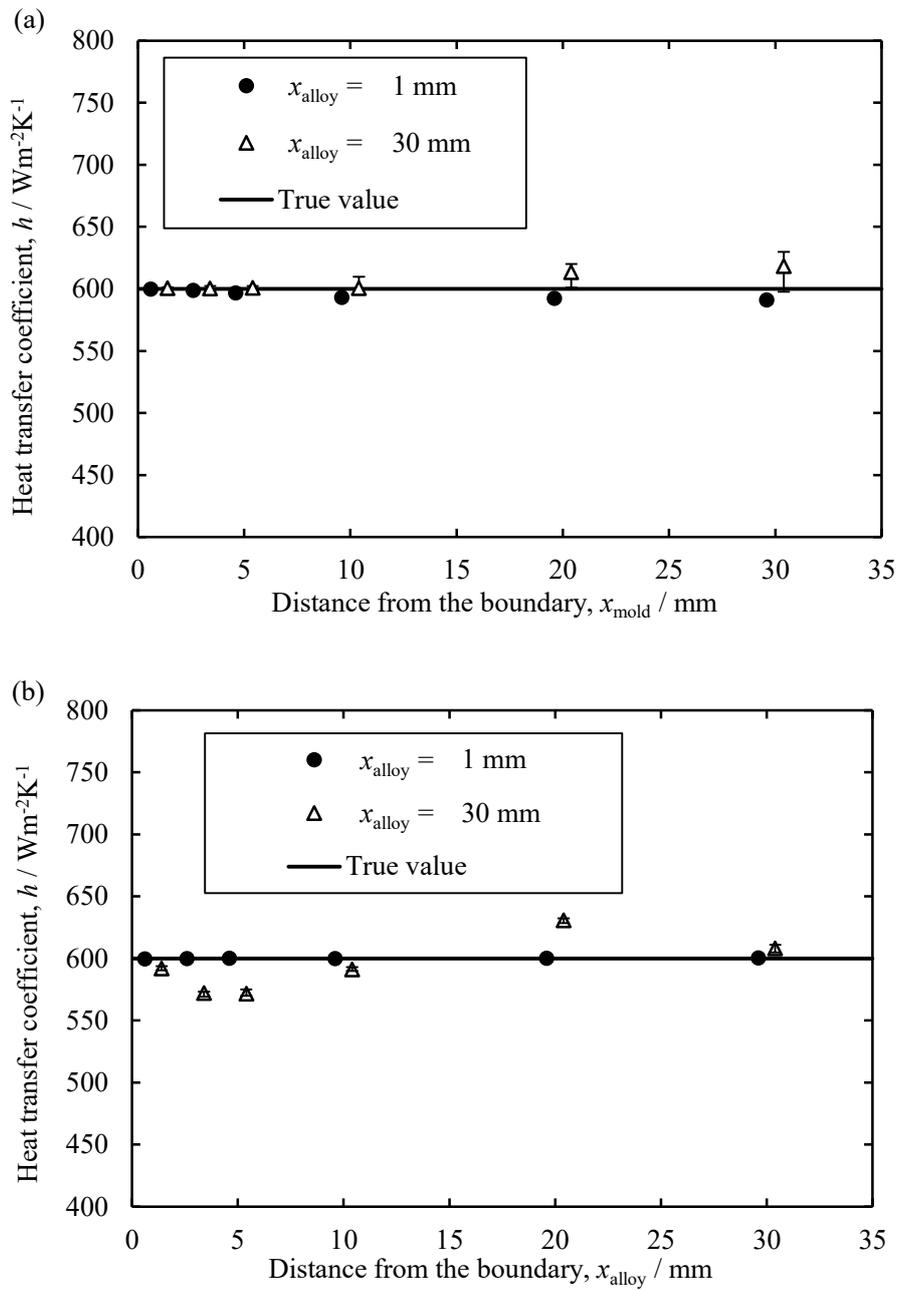


Fig. 5.5 Dependence of estimation results of constant heat transfer coefficient on the observation positions of temperature. (a) The dependence on x_{mold} for two different value of x_{alloy} , (b) the dependence on x_{alloy} for two different value of x_{mold} .

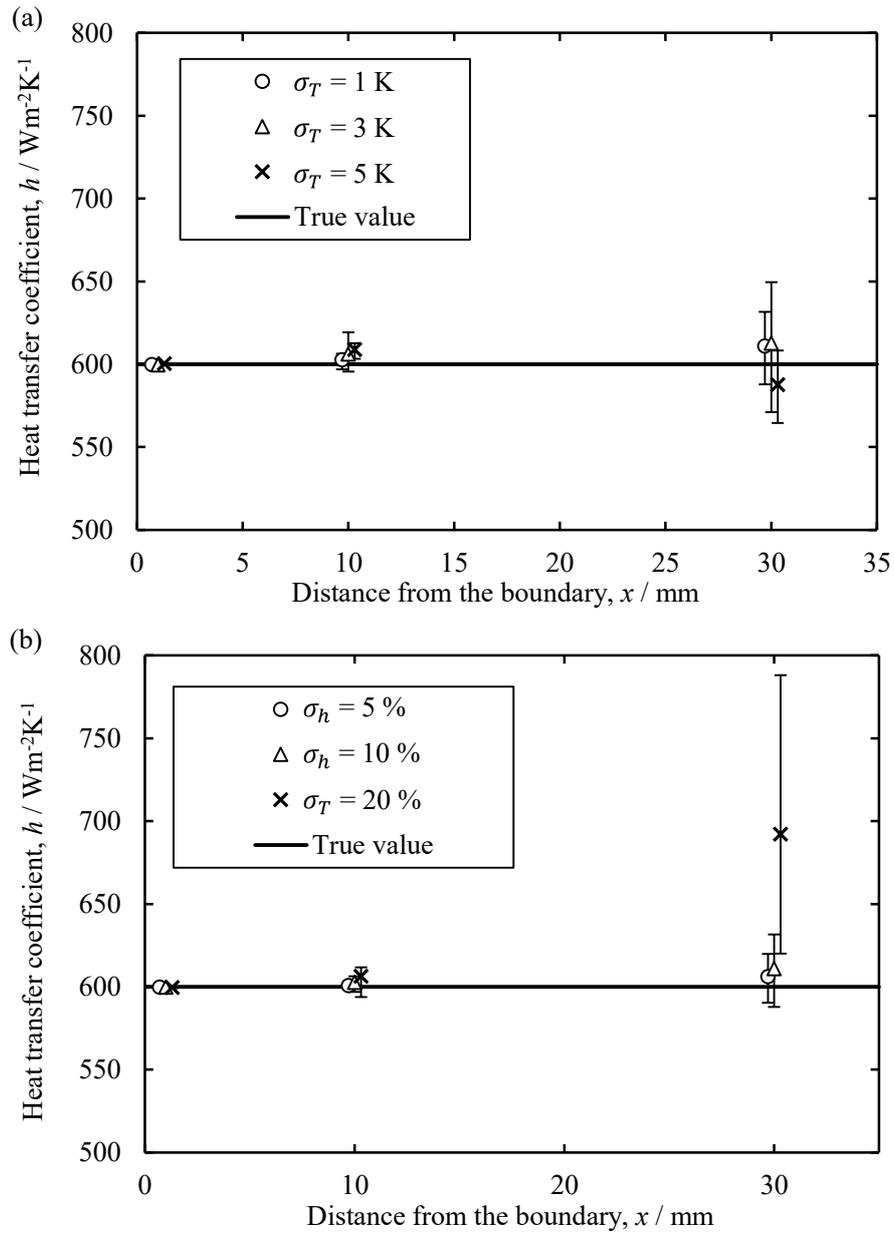


Fig. 5.6 Dependence of estimation results on the position of observation points with $x_{\text{mold}} = x_{\text{alloy}}$ for different σ_T and σ_h . (a) $\sigma_T = 1, 3, 5 \text{ K}$ and $\sigma_h = 10 \%$. (b) $\sigma_h = 5, 10, 20 \%$ and $\sigma_T = 1 \text{ K}$.

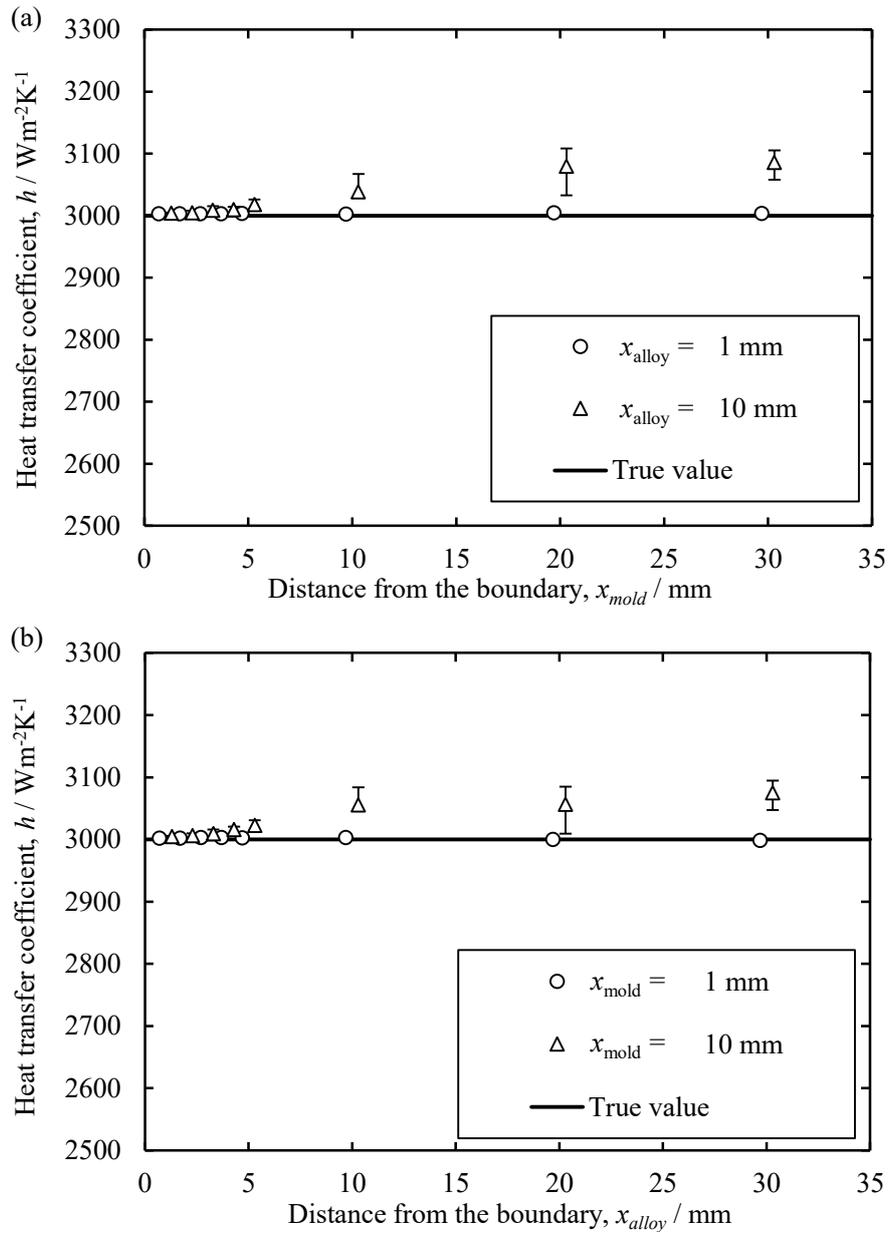


Fig. 5.7 Dependence of estimation results of constant heat transfer coefficient on the position of the observation points of temperature when the true value was $3000 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$. (a) The dependence on x_{mold} for two different value of x_{alloy} , (b) the dependence of x_{alloy} for two different value of x_{mold} .

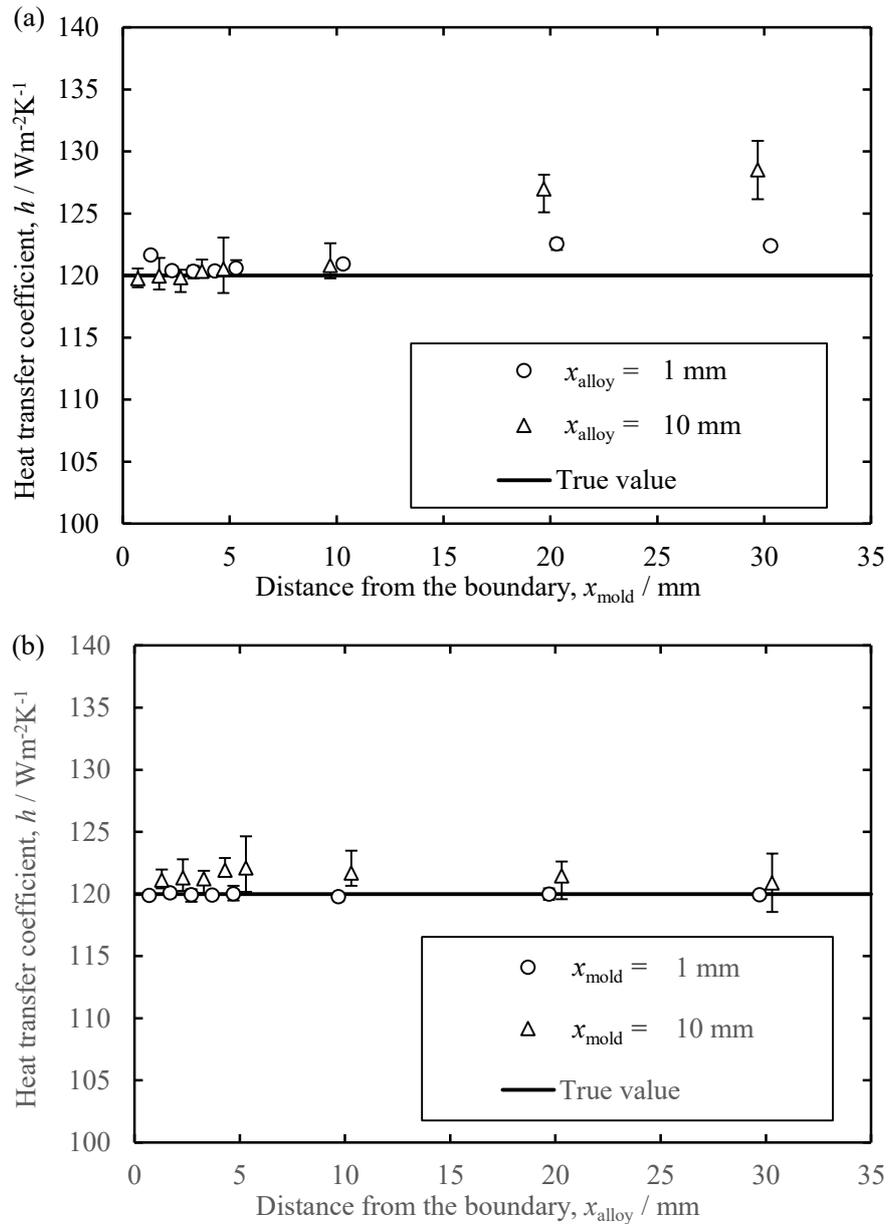


Fig. 5.8 Dependence of estimation results of heat transfer coefficient on the position of observation points of temperature when the true value was $120 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$. (a) The dependence on x_{mold} for two different value of x_{alloy} , (b) the dependence of x_{alloy} for two different value of x_{mold} .

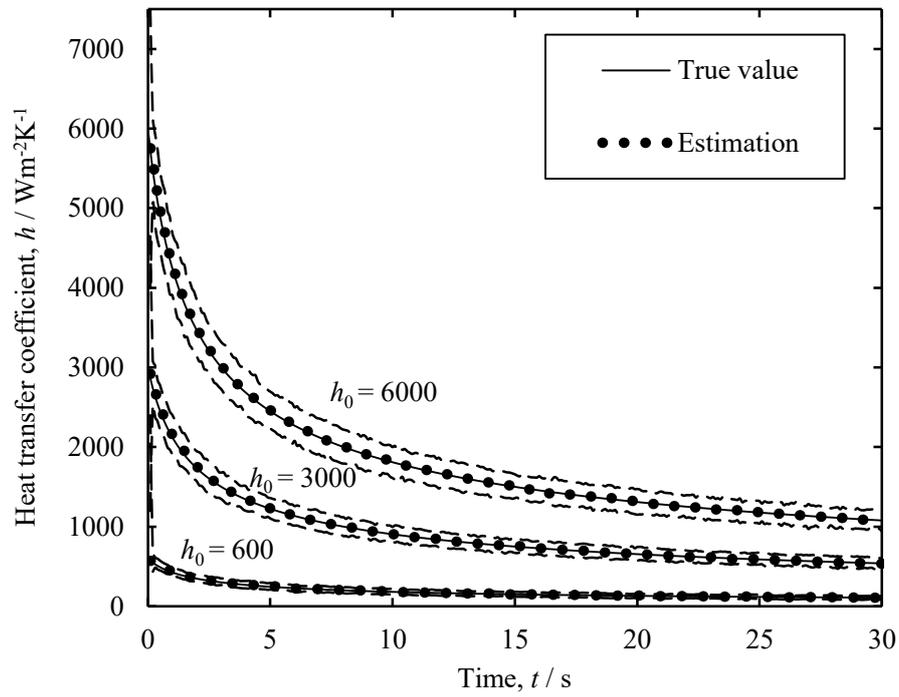


Fig. 5.9 Estimation results of time dependent heat transfer coefficient when true value was $h = h_0 t^{0.5}$ with two observation positions. $x_{\text{alloy}} = x_{\text{mold}}$.

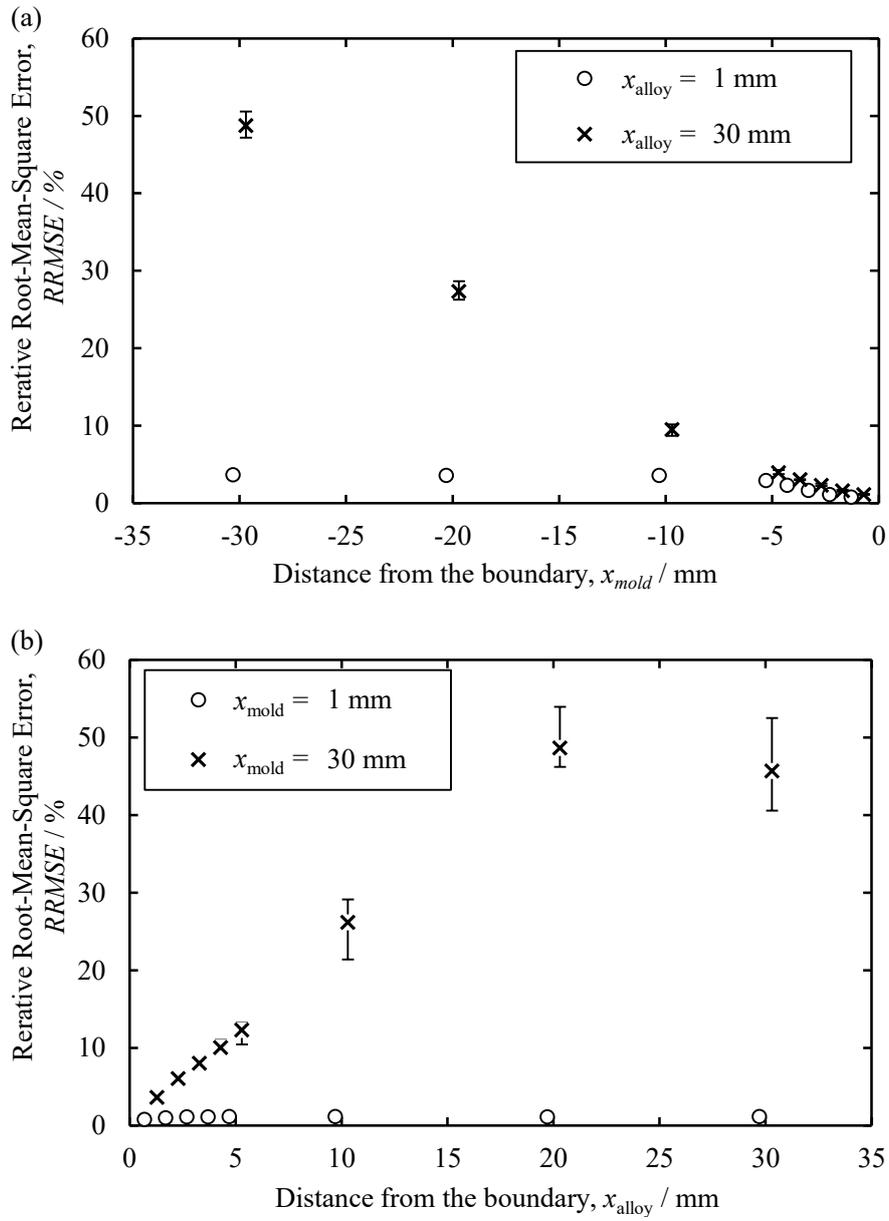


Fig. 5.10 Dependence of RRMSE for estimation result of time dependent heat transfer coefficient on (a) x_{mold} for two different x_{alloy} and (b) x_{alloy} for x_{mold} .

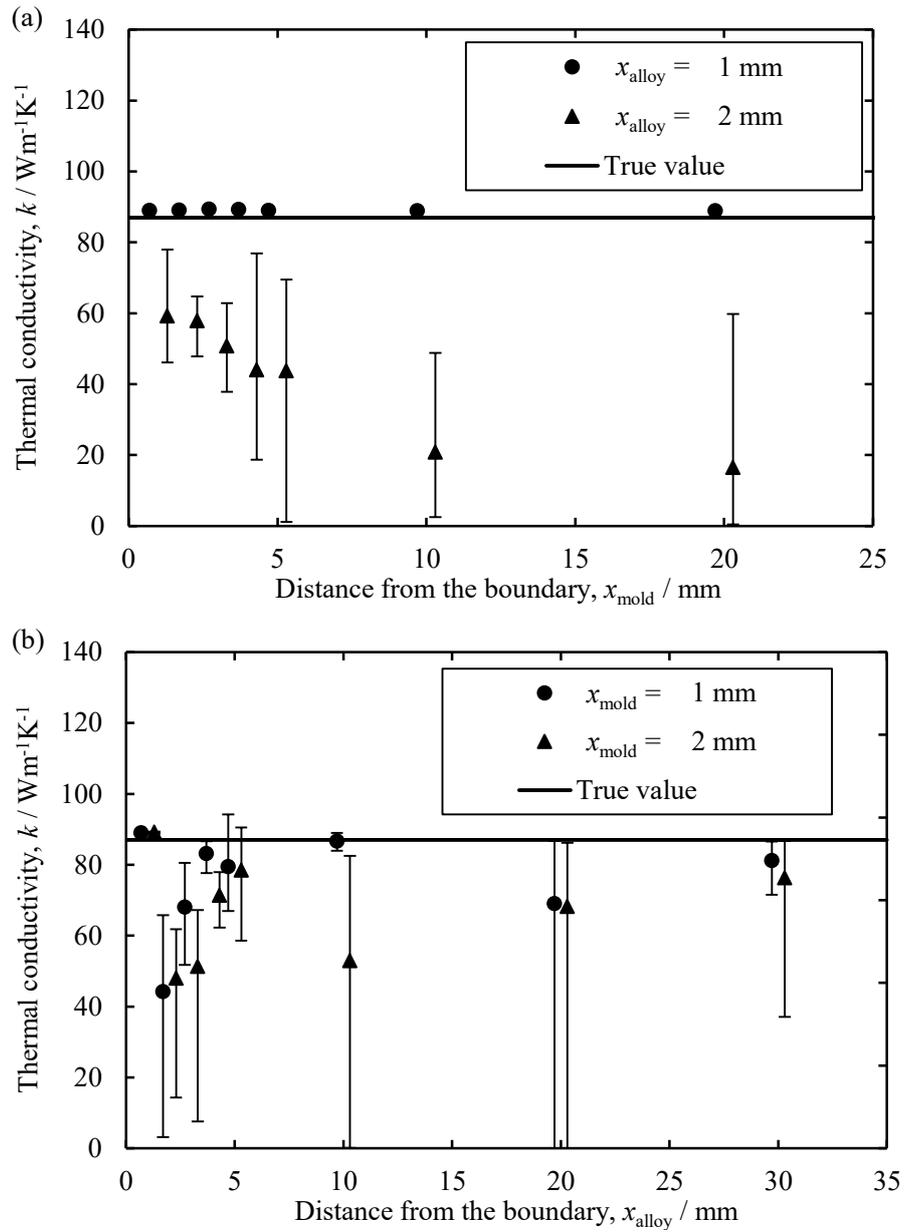


Fig. 5.11 Estimation results of thermal conductivity with three observation points. (a) Dependence on x_{mold} for two different values of x_{alloy} , (b) dependence on x_{alloy} for two different values of x_{mold} . x_{alloy} indicates the observation position in the alloy closer to the mold.

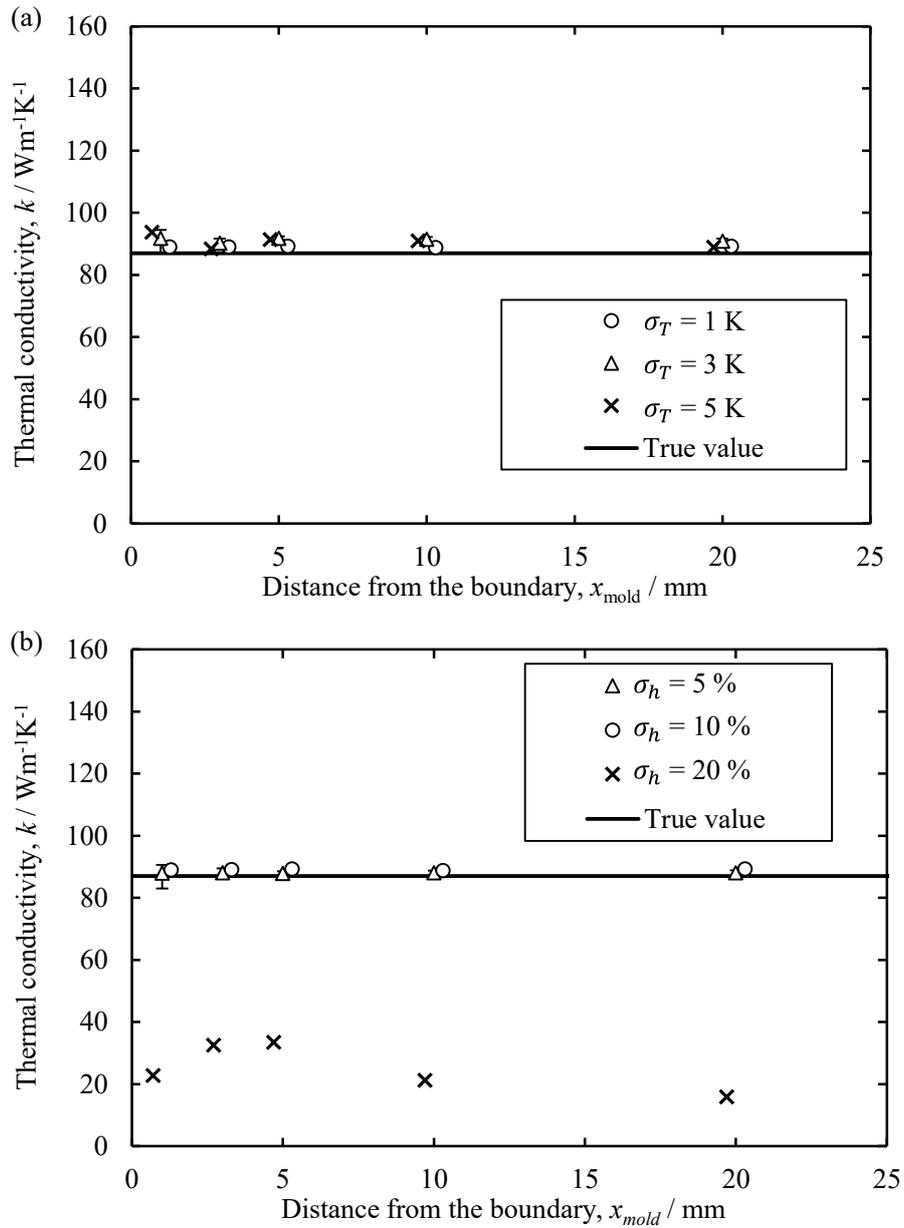


Fig. 5.12 Estimation results of thermal conductivity with three observation positions. (a) Dependence on estimation results on x_{mold} with $\sigma_k = 10\%$ and $\sigma_T = 1, 3$ and 5 K. (b) Dependence on estimation results on x_{mold} with $\sigma_k = 5, 10$ and 20% and $\sigma_T = 1$ K.

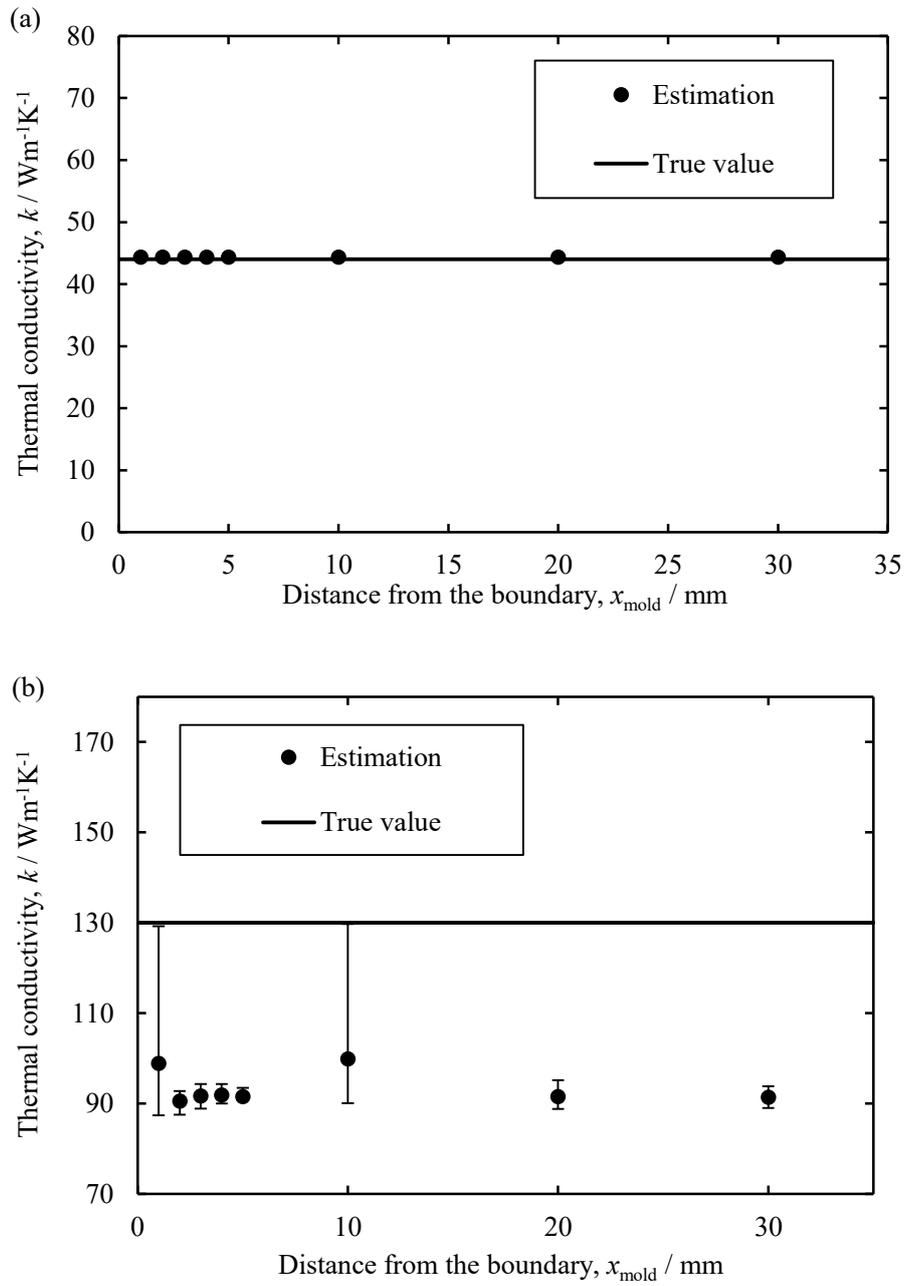


Fig. 5.13 Dependence of estimation results of thermal conductivity on x_{mold} when the true value was (a) $47 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ and (b) $130 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$.

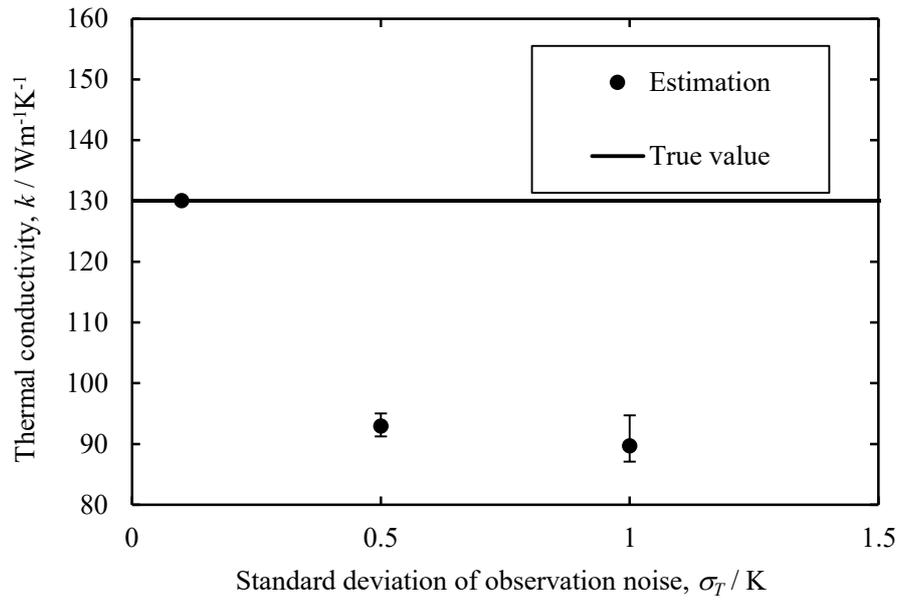


Fig. 5.14 Relation between estimation results of thermal conductivity and σ_T when the true value was $130 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$.

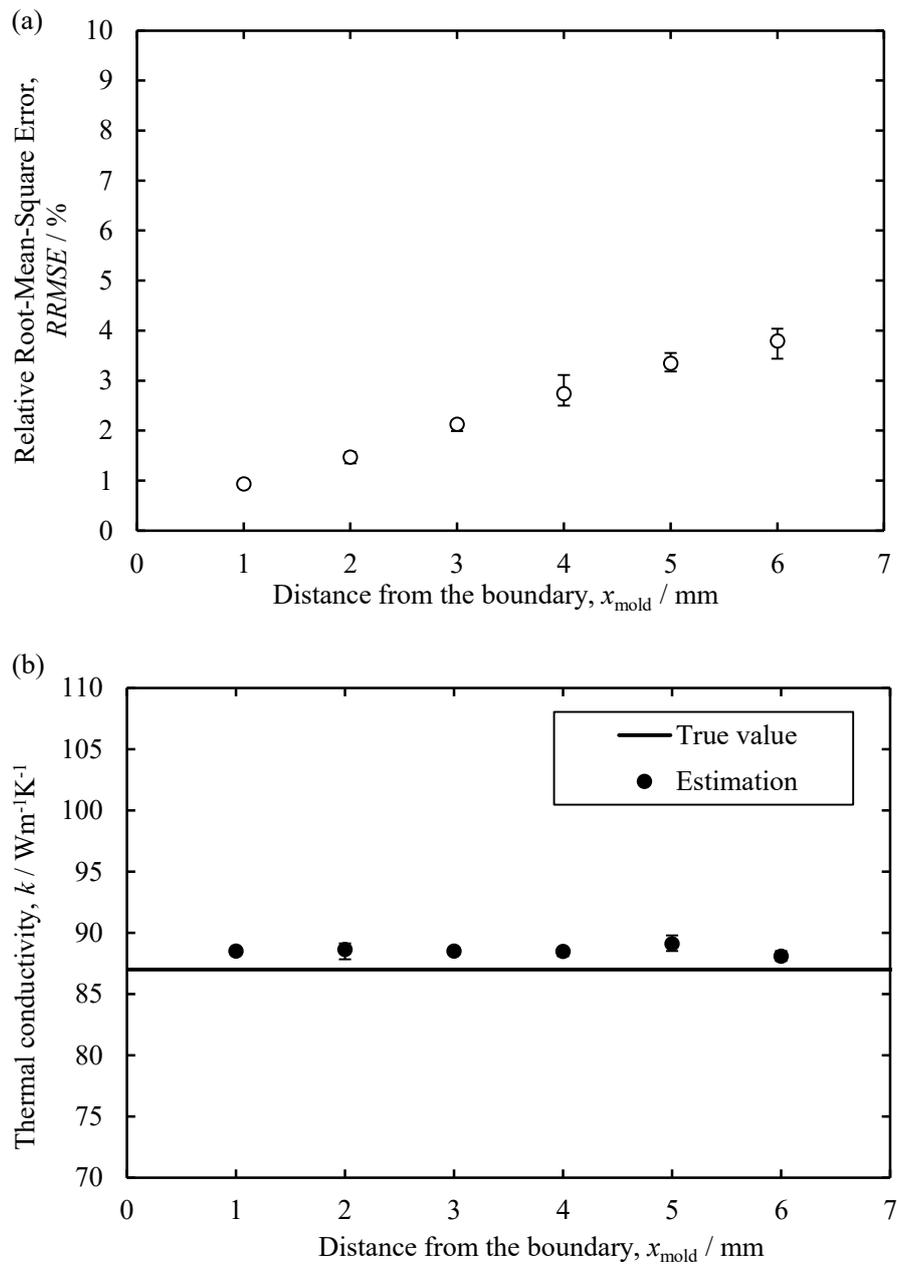


Fig. 5.15 Dependence of (a) estimation accuracy of heat transfer coefficient and (b) estimation result of thermal conductivity on x_{mold} in simultaneous estimation.

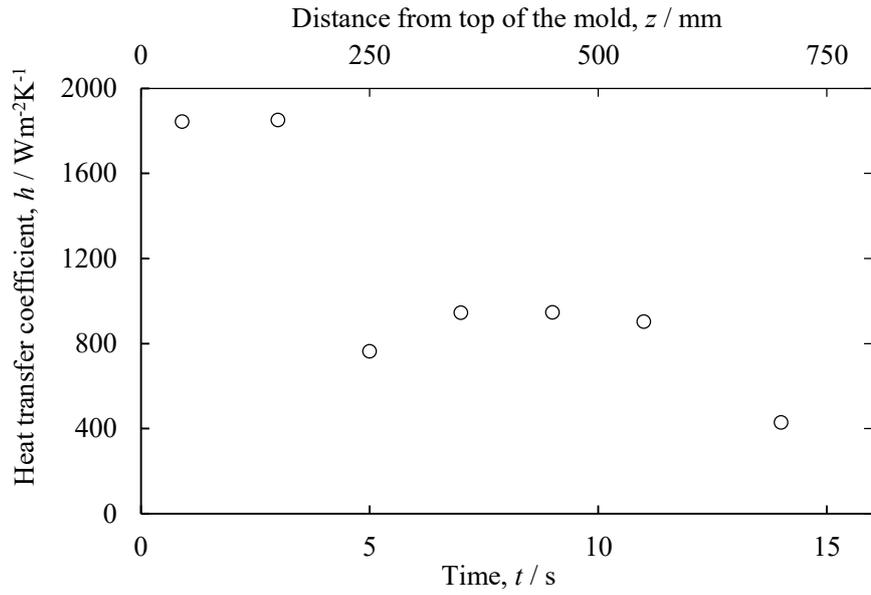


Fig. 5.16 Time dependence of calculated heat transfer coefficient from thermal flux.

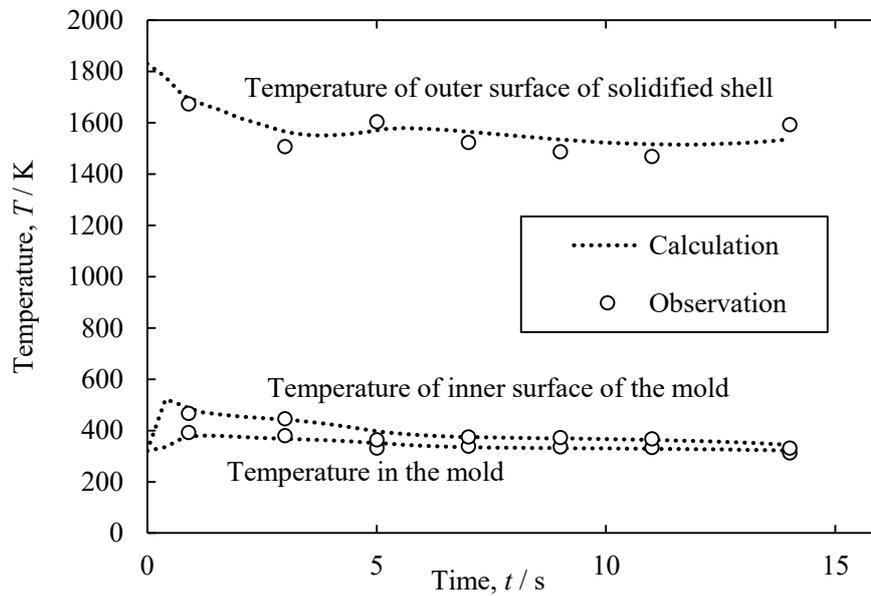


Fig. 5.17 Cooling curves of mold and the alloy of continuous casting calculated and observed.

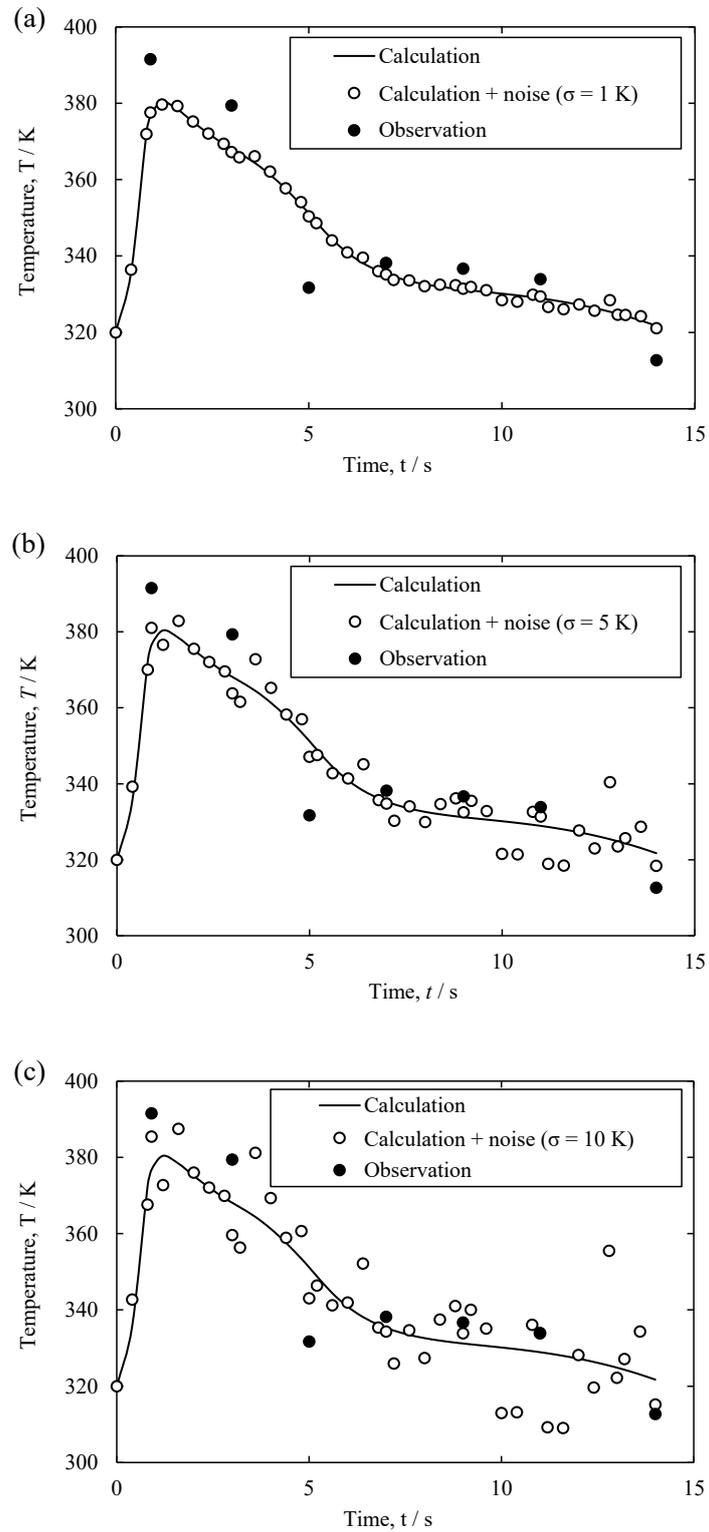


Fig. 5.18 Cooling curves calculated and observed in the mold. Observation noise was added to calculated temperature. The standard deviation of observation noise was (a) 1 K, (b) 5 K and (c) 10 K.

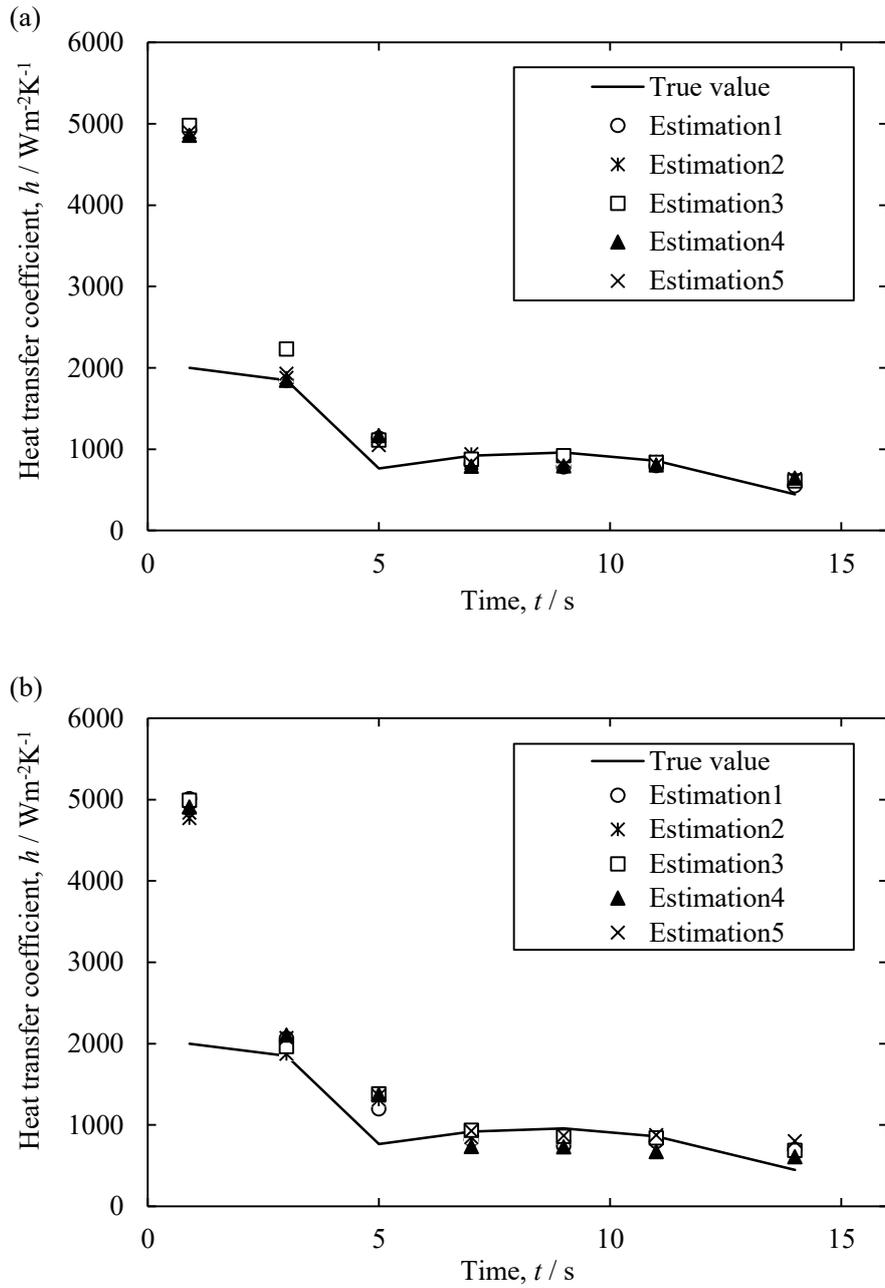


Fig. 5.19 Estimation results of heat transfer coefficient in twin experiment. The standard deviation of observation noise was (a) 5 K and (b) 10K.

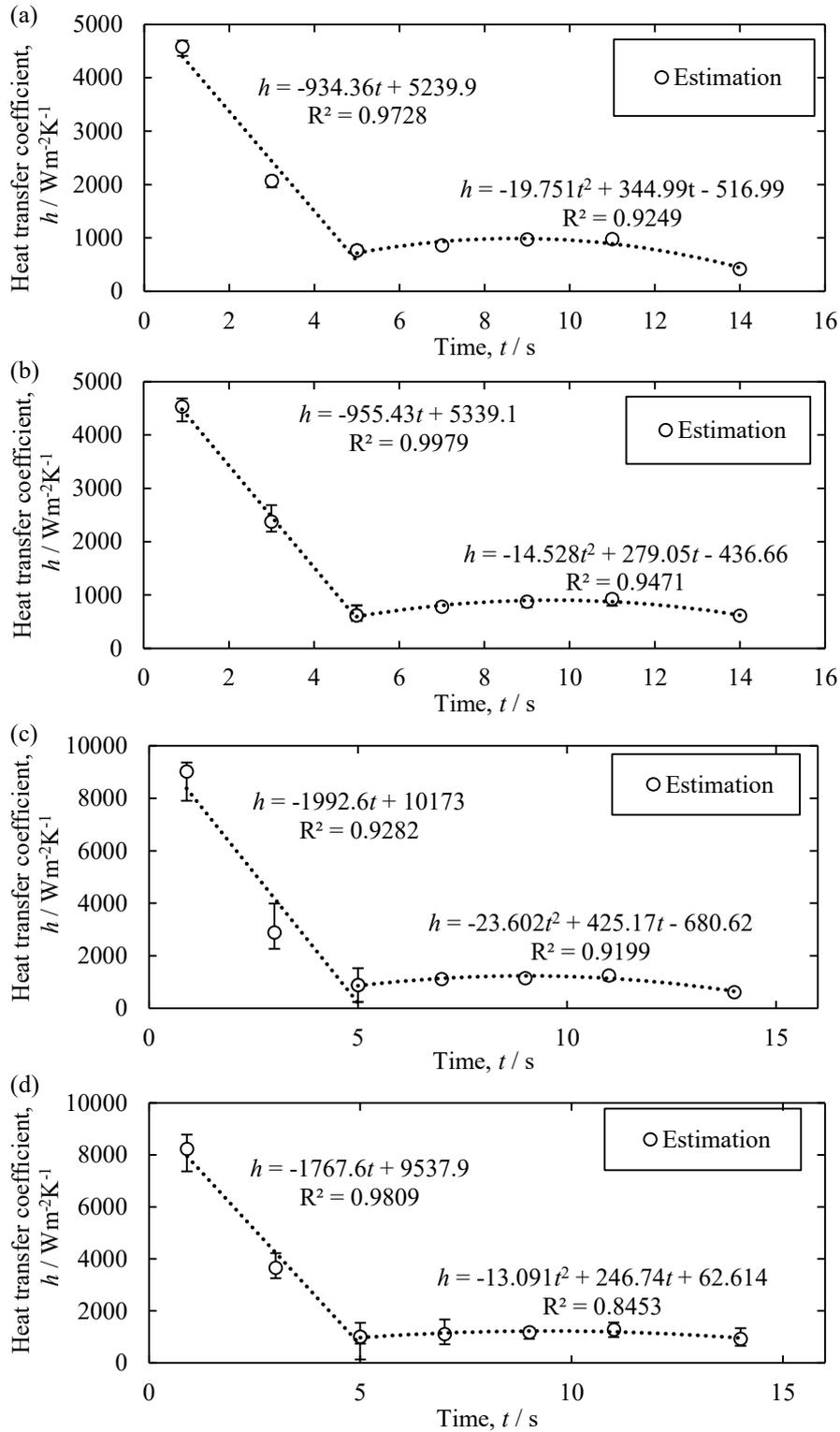


Fig. 5.20 Time dependence of estimated mold-alloy heat transfer coefficient (a) with one observation point when $\sigma_T = 5$ K, (b) with one observation point when $\sigma_T = 10$ K, (c) with two observation points when $\sigma_T = 5$ K, (d) with two observation points when $\sigma_T = 10$ K.

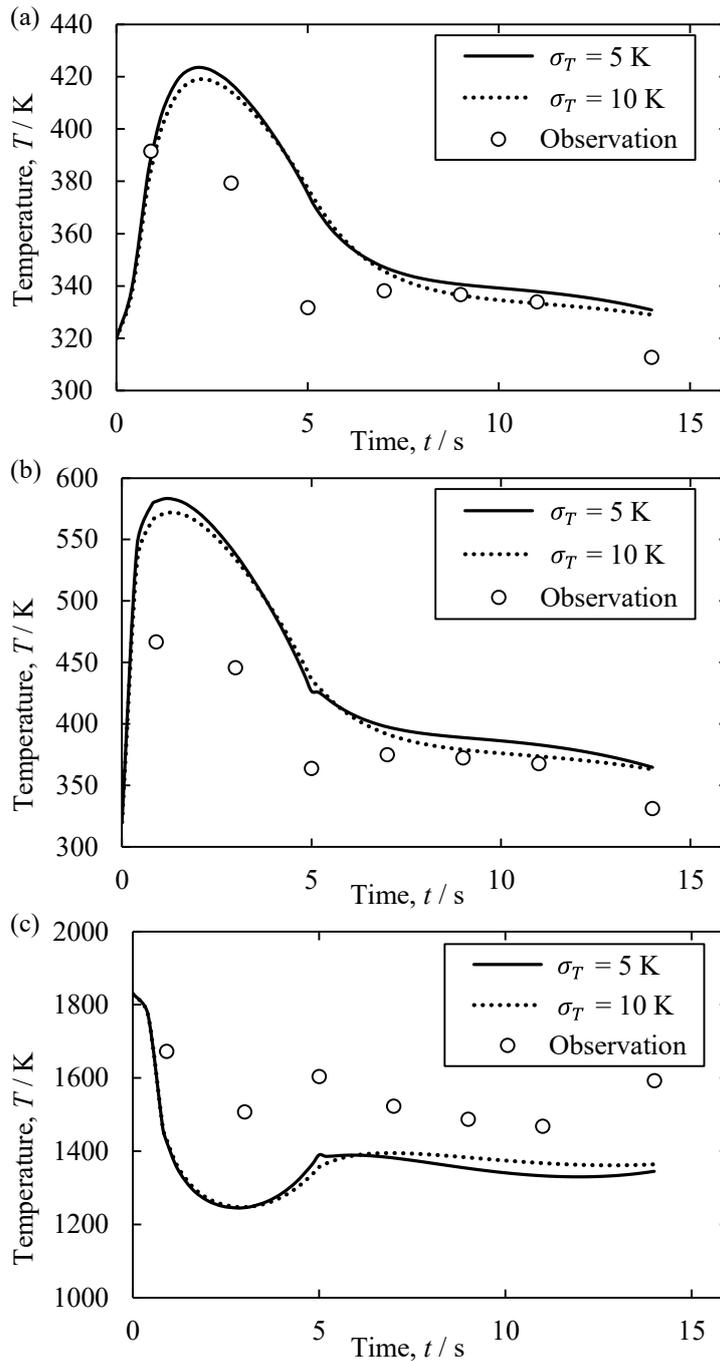


Fig. 5.21 Time dependence of observed and calculated temperature at (a) the point in the mold at a distance of 13 mm from mold/alloy interface, (b) inner surface of the mold, (c) outer surface of solidified shell of the alloy. Temperature was calculated with estimated heat transfer coefficient with one observation point.

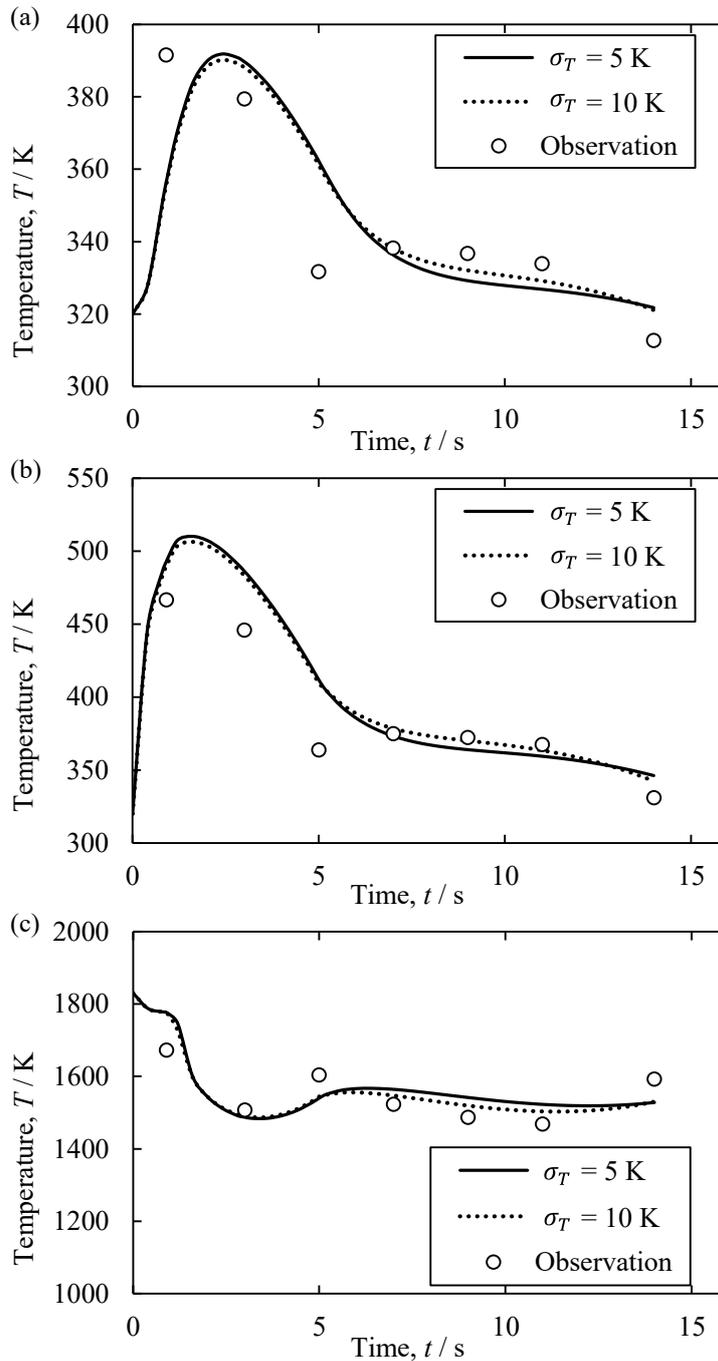


Fig. 5.22 Time dependence of observed and calculated temperature at (a) the point in the mold at a distance of 13 mm from mold/alloy interface, (b) inner surface of the mold, (c) outer surface of solidified shell of the alloy. Temperature was calculated with estimated heat transfer coefficient with two observation point.

第6章 総括

凝固現象の計算機シミュレーションは、金属の凝固過程を理解・予測するために有効な手段である。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したときに、入力パラメータの値が欠如していることが多くのシミュレーションで共通の問題となっている。例えば、新しい材料を開発する場合は、組織予測に必要な熱力学量や界面物性値等の入力パラメータは文献で報告されていない。更に、パラメータによっては高精度な測定が困難な場合や、既存の方法では決定できない場合がある。本研究では凝固シミュレーションの中でもフェーズフィールド法と凝固伝熱解析に注目した。凝固伝熱解析は鋳物と鋳型を含んだマクロスケールのシステムを対象として、鋳型内で溶湯がどのように凝固するのか予測するために用いられる。このとき、鋳型-溶湯間の熱伝達係数の精度が問題となる場合が多い。一方、フェーズフィールド法はデンドライトのようなメゾスケールの凝固組織の発展の予測に非常に有効な手段である。入力パラメータとして固液界面物性値が必要となるが、非平衡状態における固液界面物性値の算出方法は開発されていない。

そこで本研究ではデータ科学の手法であるデータ同化を凝固シミュレーションに応用し、拡張性と簡便さを持つ高精度な入力パラメータの推定方法の開発を試みた。データ同化は観測データをシミュレーションに取り入れることで、システムの状態やパラメータを推定する方法である。以下に本論文の各章で議論した内容と主な成果をまとめる。

第1章の序論においては、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点を指摘した。そして、データ同化手法についての概要を説明し、本研究の目的を述べた。

第2章では、本研究で用いたデータ同化の方法である粒子フィルタおよび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。そして、等温凝固におけるメゾスケールの凝固組織の発展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について説明した。

第3章では双子実験によって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検証し、固液界面物性値を推定するための方法を開発した。固液界面物性値の推定では分子動力学法で得られた凝固組織の時間発展を観測データとするが、双子実験では代わりにフェーズフィールド法の結果を観測データとすることで、データ同化の有効性を簡便に評価できる。まず、分子動力学法で得られた観測データと同じ大きさのシステムで、固液界面物性値が推定可能か検討した。固液界面物性値は固液界面エネルギーの平均値と異方性パラメータ ε_1 および ε_2 、界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータであるが、固液界面物性値をすべて同時に推定した場合、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り、推定条件を変更しても同様の精度で推定できることが明らか

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、得られた推定結果を既知としてその他の固液界面物性値の推定を行うことで、推定精度を向上させる方法を考案した。このような方法を本研究では多段階推定と呼ぶこととした。界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータが既知のとき、実際に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が向上した。このように、粒子フィルタに基づく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。また、システムサイズおよび格子点間隔が推定精度に及ぼす影響について調査した。システムサイズが大きい場合、すべての固液界面物性値を同時に推定したときには、界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータに加えて、固液界面エネルギーの平均値も同時に推定可能であった。システムサイズおよび格子点間隔が変化した場合でも、多段階推定によって全ての固液界面物性値を推定できることが示された。

本研究で開発した多段階推定では、単一の分子動力学計算の結果から全ての固液界面物性値を決定することができる。これは従来の方法にはない特長である。また、本手法では高過冷度における固液界面物性値を推定することができる。従来、固液界面エネルギーの算出方法は融点における値を算出する方法であるため、多段階推定は過冷状態の固液界面物性値を推定できる新たな方法であると言える。

第4章では、第3章で開発した多段階推定の方法を用いて、分子動力学法で得られた凝固組織の変化を観測データとして固液界面物性値を推定した。なお、観測データは提供を受けたものである。多段階推定を行った結果、純アルミニウムの固液界面物性値として、界面カイネティック係数の平均値は $4.5 \times 10^{-3} \text{ sm}^{-1}$ 、固液界面エネルギーの平均値は 0.18 Jm^{-2} 、界面カイネティック係数の異方性パラメータは 0.69 、 ε_1 は 0.007 、 ε_2 は -0.0027 という推定結果が得られた。次に、推定精度を検証するために、推定結果を用いてフェーズフィールド法による凝固シミュレーションを行い、観測データと比較した。その結果、凝固シミュレーションの結果と観測データはよく一致した。したがって、固液界面物性値の決定には粒子フィルタに基づく多段階推定が有効であることが示された。多段階推定によって全ての固液界面物性値を単一の分子動力学計算の結果から推定可能であった。これは従来の方法にはない利点である。また、従来、分子動力学法に基づく固液界面エネルギーの算出方法では平衡状態の値しか算出できないのに対して、本手法の多段階推定では過冷状態における固液界面物性値が推定できることは特筆すべき点である。

第5章では凝固伝熱解析のパラメータ推定を行った。まず金型鑄造の熱伝達係数と溶湯の熱伝導率の推定について、データ同化の有効性を双子実験によって検証した。データ同化の方法としてはアンサンブルカルマンフィルタを用いた。その結果、鑄型や溶湯から得られた冷却曲線のみからアンサンブルカルマンフィルタによって熱伝達係数と熱伝導率を同時推定可能であることが示された。また、熱伝達係数の時間変化を事前に仮定することなく推定可能であった。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、データ同化に基づく方法は、事前に仮定をすることなく、温度の情報の

みから時間変化する熱伝達係数を推定できるという従来にはない特長を持つ。

次に、連続鋳造を対象を拡張し、連続鋳造の鋳型で実際に測定された温度を観測データとして、鋳型-溶湯間の熱伝達係数の推定を行った。なお、実機の連鋳で測定した文献値を観測データとして用いた。観測データが鋳型内の1点から得られた場合と、鋳型内と鋳型内表面の2点から得られた場合の2通りを想定し、それぞれについて粒子フィルタによって熱伝達係数を推定した。その結果、経時変化する熱伝達係数の推定結果が得られた。推定精度を検証するために、推定結果を用いて凝固伝熱解析を行い、結果を実際に測定された温度と比較した。2つの観測点から観測データが得られた場合の熱伝達係数の推定結果を用いたとき、計算結果と実際に測定された温度がよく一致した。以上のことから、鋳型の2点から観測データが得られたとき、熱伝達係数を高精度に推定可能であることが示された。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、連続鋳造を対象とした場合でも鋳型の温度のみから熱伝達係数を推定可能であった。

第6章においては、本論文を総括した。

以上のことから、データ同化は凝固シミュレーションの入力パラメータの推定に有効であることが示された。固液界面物性値は分子動力学法の結果から、粒子フィルタに基づく多段階推定によって推定可能であった。特に、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決定可能であり、過冷状態における値を推定できるのは、従来の方法にはない特筆すべき特長である。また、固液界面物性値は、今後の大規模計算技術の発展によって、より高精度かつ簡便な推定が可能となる可能性がある。また、今回はある一定の過冷度における固液界面物性値の推定を行ったが、異なる温度で推定を行うことで、固液界面物性値の温度依存性を詳細かつ簡便に検証できることが期待できる。一方、凝固伝熱解析では、鋳型や溶湯から得られた温度のみからデータ同化に基づいてパラメータを推定可能であった。また、時間変化する熱伝達係数を推定するとき、事前の仮定が不要であるという利点があった。データ同化に基づいた凝固伝熱解析のパラメータ推定方法は、温度のみからパラメータを簡便に推定できる方法であり、様々な鋳造プロセスへの応用が期待できる。

研究業績目録

【原著論文（博士論文関連）】

- [1] 岡ゆきみ, 大野宗一, “データ同化に基づく鋳造プロセスにおける伝熱解析のパラメータ推定”, 鉄と鋼, 103 (2017) 89.
- [2] Yukimi Oka, Munekazu Ohno, “Parameter estimation for heat transfer analysis during casting processes based on ensemble Kalman filter”, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 149 (2020) 119232.
- [3] Munekazu Ohno, Yukimi Oka, Shinji Sakane, Yasushi Shibuta and Tomohiro Takaki, “Bayesian inference of solid-liquid interfacial properties out of equilibrium”, *Physical Review E*, 101 (2020) 052121.
- [4] Yukinobu Natsume, Yukimi Oka, Jota Ogawa and Munekazu Ohno, “Estimation of time-dependent heat transfer coefficient in unidirectional casting using a numerical model coupled with solidification analysis and data assimilation”, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 150 (2020) 119222.

【学術雑誌等（博士論文関連）】

- [1] 大野宗一, 松浦清隆, 岡ゆきみ, 「データ同化を利用した鋳造過程における熱物性値の算出」, 凝固プロセス研究会提出資料, 日本学術振興会 製鋼第 19 委員会 凝固プロセス研究会, 19 委-12808 , 凝固プロセス-VII-112, 2016 年

【学会発表（博士論文関連）】

- [1] 岡ゆきみ, 大野宗一, 松浦清隆, 「データ同化を利用した高温物性値推定の試み」, 第 2 回凝固組織形成シミュレーション研究会, ハトヤホテル, 2016 年 3 月
- [2] 大野宗一, 松浦清隆, 岡ゆきみ, 「データ同化を利用した鋳造過程における物性値の算出」, 日本学術振興会 製鋼第 19 委員会 凝固プロセス研究会, かでる 2・7, 2016 年 5 月
- [3] Yukimi Oka, Munekazu Ohno, Kiyotaka Matsuura, 「Estimation of High Temperature Quantities in Heat Conduction Problem during Casting Processes Based on Data Assimilation」, 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9), 京都国際会議場, 2016.8.
- [4] 岡ゆきみ, 大野宗一, 松浦清隆, 「データ同化に基づく鋳造プロセスにおける熱伝導率および熱伝達係数の推定」, 日本金属学会・日本鉄鋼協会・両支部合同サマーセッション, 北海道大学, 2016 年 7 月
- [5] 岡ゆきみ, 大野宗一, 松浦清隆, 「データ同化に基づく伝熱解析における熱伝導率および

- 熱伝達係数の推定」, 日本鉄鋼協会 第 172 回秋季講演大会, 大阪大学, 2016 年 9 月
- [6] 岡ゆきみ, 大野宗一, 松浦清隆, 「データ同化に基づいた鋳造プロセスにおけるパラメータ推定」, 日本鉄鋼協会 第 173 回春季講演大会, 首都大学東京, 2017 年 3 月
- [7] Yukimi Oka, Munekazu Ohno and Kiyotaka Matsuura, 「Parameter estimation in heat conduction problem during casting processes based on data assimilation」, The 10th Pacific Rim International Conference On Modeling of Casting and Solidification Processes, Macrolink Legend Hotel, Beijing, China, 2017.8.
- [8] 岡ゆきみ, 大野宗一, 松浦清隆, 「アンサンブルカルマンフィルタを用いた伝熱解析におけるパラメータ推定」, 日本鉄鋼協会 第 174 回秋季講演大会, 北海道大学, 2017 年 9 月
- [9] Yukimi Oka, Munekazu Ohno, Tomohiro Takaki, Yasushi Shibuta and Kiyotaka Matsuura, 「Parameter Estimation during Solidification of Metals based on Data Assimilation」, The 13th World Congress in Computational Mechanics (WCCMXIII), 2019295, New York Marriott Marquis, New York, USA, 2018.7.
- [10] 岡ゆきみ, 澁田靖, 高木知弘, 大野宗一, 「データ同化に基づいた金属の凝固における固液界面エネルギーの推定」, 日本鉄鋼協会 第 176 回秋季講演大会, 東北大学, 2018 年 9 月
- [11] 棗千修, 内山涼介, 岡ゆきみ, 大野宗一, 「粒子フィルタに基づく熱伝達係数の推定を導入した凝固解析による一方向鋳造実験の冷却曲線再現」, 日本鉄鋼協会 第 176 回秋季講演大会, 東北大学, 2018 年 9 月
- [12] Yukimi Oka, Munekazu Ohno, Tomohiro Takaki, Yasushi Shibuta and Kiyotaka Matsuura, 「Parameter Estimation in Solidification Processes of Metals based on Data Assimilation」, 55th Annual Technical Meeting of the Society of Engineering Science (SES2018), University Carlos III, Madrid, Spain, 2018.10.
- [13] 岡ゆきみ, 澁田靖, 高木知弘, 松浦清隆, 大野宗一, 「データ同化に基づく金属の凝固における固液界面物性値の推定」, 日本鉄鋼協会 第 177 回春季講演大会, 東京電機大学, 2019 年 3 月
- [14] Yukimi Oka, Tomohiro Takaki, Yasushi Shibuta and Munekazu Ohno, 「Estimation of Properties of Solid-liquid Interface based on Data Assimilation」, 5th International Conference on Advances in Solidification Processes (ICASP5), Imlauer Hotel Pitter Salzburg, Salzburg, Spain, 2019.6.
- [15] 岡ゆきみ, 高木知弘, 澁田靖, 大野宗一, 「データ同化に基づいた純金属の凝固における固液界面物性値の推定方法の構築」, 日本金属学会 第 166 回春期講演大会, 2020 年 3 月
- [16] 及川利彦, 佐藤拓実, 棗千修, 岡ゆきみ, 大野宗一, 「データ同化による砂型-鋳物間の熱伝達係数の推定結果に与える熱伝導の影響」, 第 19 回 日本金属学会東北支部研究

発表大会, 2020 年 11 月

【受賞】

[1] 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9)

「Excellent Poster Award for Young Scientists」受賞, 2016 年 8 月

謝辞

本論文を執筆するにあたり、学部生の時分からおよそ 6 年間にわたり指導教員としてご指導頂きました北海道大学大学院工学研究院 材料科学部門 大野宗一教授に深く感謝申し上げます。大野教授には、研究や発表において重視すべきことなどを基礎から丁寧にご教授いただきました。本研究の成果の多くは、終始自由な発想の下研究を遂行できたからこそ生まれたものであり、斯様な恵まれた研究環境を与えていただけたことは望外の喜びであります。重ねてお礼申し上げます。

学位論文審査において、本論文に対して有益なご助言およびご指導を頂きました北海道大学大学院工学研究院 材料科学部門 三浦誠司教授および北海道大学大学院工学研究院 材料科学部門 橋本直幸教授に厚くお礼申し上げます。

研究室におけるゼミ発表や普段のディスカッションを通じて貴重なご意見を頂戴いたしました元北海道大学大学院工学研究院 材料科学部門 松浦清隆教授、北海道大学大学院工学研究院 材料科学部門 徳永透子助教（現 青森県量子科学センター）および北海道大学大学院工学研究院 材料科学部門 山田亮助教に深謝申し上げます。

研究活動を行うにあたって、共同研究においてご指導やご助言を頂きました京都工芸繊維大学 機械工学系 高木知弘教授、秋田大学 大学院理工学研究科 棗千修准教授に深謝申し上げます。

本研究を遂行する上で欠かせない分子動力学計算結果の提供、そしてご指導およびご助言を頂きました東京大学 大学院工学系研究科 澁田靖准教授に深謝申し上げます。

本研究を遂行するにあたり、日本鉄鋼協会を始めとした学会発表会場において、数多くの先生方や企業の方々から有益なご助言を賜りました。深くお礼申しあげます。また、当研究室に所属する多くの方々より多様な視点からご助言を頂きました。ご支援・ご協力いただきながらお名前をここに記すことができなかつた多くの方々に深く感謝いたします。