

# 第一原理計算と機械学習ポテンシャル MD 法による軽金属材料の冷却過程における原子ダイナミクスの解明

## Understanding Rapid Cooling Processes of Lightweight Alloys Using Ab Initio and Machine Learning Potential Molecular Dynamics

圓谷 貴夫

熊本大学 先進マグネシウム国際研究センター

### 1. 研究目的

マグネシウム合金、アルミニウム合金、チタン合金といった軽金属は、その軽量性と高強度により、自動車、航空宇宙、電子機器など幅広い分野で使用されている。しかし、その機械的特性は合金組成だけでなく、その製造プロセスや冷却条件に大きく依存するが、合金化した際の添加元素の役割については不明な点が多い。

その中でも Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo (Ti-6242)合金 (wt.%) は耐熱性と高温域での耐クリープ性に優れることから、航空機用ガスタービンの高温部材などに使用されている。<sup>1)</sup> 一方で、本合金は切削加工性が低いという課題を有しており、近年では、積層造形法、特にレーザー粉末床溶融結合法(L-PBF)による形成が注目されている。L-PBF では、粉末にレーザーを照射して局所的に溶融・凝固させることで、所望の形状に造形することができる。

この過程では、メルトプールと呼ばれる局所領域において急速な溶融・凝固が生じる。<sup>2)</sup> その際の具体的な冷却速度や、各元素の原子レベルでの凝固ダイナミクスは十分には明らかになっていない。特に L-PBF 特有の超急凝固プロセスは、元素の偏析、短距離秩序、および相形成を通じて微細組織に影響を与えられ、さらに、このような組織の違いは、最終的な機械的特性を支配する重要な因子となる。

一方、熊本大学で開発された長周期積層構造を有する高強度 Mg-Zn-Y 合金においても、破壊靱性値などの巨視的な機械的特性は、単ロール式液体急冷におけるロール周速によって変化する Mg 薄帯の組織に強く依存することが実験で明らかとなっている。しかしながら、急冷薄帯内部における局所的な冷却速度や熱勾配の測定は、実験的にはほぼ不可能である。

そこで本研究では、Mg-Zn-Y 合金の単ロール液体急冷プロセスに対する熱流体シミュレーションを行い、銅ロールの回転速度に対する急冷薄帯の温度分布と流速の違いを定量的に評価することで、組織形成メカニズムの解明を試みてきた。しかし、熱流体シミュレーションの入力パラメータとなる過冷却液体の粘性値や熱伝導率の温度依存性といった物性値は、熱流体シミュレーションの結果に大きな影響を与えるにも関わらず、実験的に取得することは困難であり、またデータベースが不足している現

状にある。そのため、材料組成、すなわち元素間の結合状態を反映した熱流体シミュレーションは未だ実現できていない。

## 2. 研究成果の内容

本研究課題では、Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo (wt.%) 合金および Mg-Zn-Y 合金を対象として、分子動力学 (MD) シミュレーションを用いた物性値予測および凝固ダイナミクス解析を実施した。特に、粘性値や熱伝導度などの輸送特性は、各元素の拡散挙動と密接に関係していることから、凝固過程における各元素の拡散係数を評価するとともに、局所構造解析を行った。局所構造の評価には、動径分布関数 (Radial Distribution Function: RDF) およびボロノイ指数解析を用いた。

第一原理 MD 計算には、平面波基底および Born-Oppenheimer Molecular Dynamics (BOMD) 法に基づく Vienna Ab initio Simulation Package (VASP) を用いた。計算は原子数  $N$ 、体積  $V$ 、温度  $T$  を一定とする NVT アンサンブル条件下で実施した。時間刻み (time step) は Ti-6242 合金および Mg-Zn-Y 合金のいずれに対しても 2 fs とし、温度制御には Nosé-Hoover サーマスタットを使用した。

Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo (wt.%) 合金については、組成を Ti-10.57Al-0.80Sn-2.085Zr-0.99Mo (at.%) へ換算し、第一原理 MD 計算で現実的に取り扱い可能な 128 原子系へ割り当てた。その結果、Ti: 109 個、Al: 14 個、Sn: 1 個、Zr: 3 個、Mo: 1 個となった。しかし、Sn および Mo 原子数が極めて少なく、平均二乗変位 (Mean Squared Displacement: MSD) や動径分布関数の時間平均など、統計的解析を行う上で十分なサンプル数が得られないという問題があった。そこで本研究では、統計精度を優先し、Sn および Mo を省略した Ti-Al-Zr モデル合金を用いて原子拡散挙動および局所構造解析を実施した。

その後、GPGPU を利用した第一原理 MD 計算の高速化を行い、Miyabi-G において VASP の GPU 実装版を用いることで大規模計算を実現した。その結果、Ti-Al-Zr-Sn-Mo 合金について 250 原子規模の第一原理 MD シミュレーションが可能となり、Sn および Mo を含む実組成に近いモデルでの解析を実施できた。これにより、各元素の拡散係数の温度依存性や、冷却過程における短距離秩序形成の特徴をより詳細に解析することが可能となった。

さらに、Mg-Zn-Y 合金については、第一原理 MD 計算データを教師データとして機械学習ポテンシャルを構築し、大規模 MD シミュレーションを実施した。機械学習ポテンシャルを用いることで、第一原理計算と比較して大規模かつ長時間のシミュレーションが可能となり、過冷却液体状態における粘性値の温度依存性を Green-Kubo 法に基づいて評価した。得られた粘性値を熱流体シミュレーションへ入力することで、単ロール液体急冷法におけるロール周速と流動状態、冷却速度、

および急冷薄帯形成との関係について解析を進めた。

### 3. 学際共同利用プログラムが果たした役割と意義

本研究では計算規模の拡大に伴い、スーパーコンピュータ環境の性能向上が研究の進展に直接的に寄与した。九州大学スーパーコンピュータシステム「玄界」では、128 原子系に対する第一原理 MD 計算において、1 週間 2 ノード占有（ノードあたり 120 コア）で約 4500 MD ステップの計算が可能であった。一方、GPU を活用可能な Miyabi-G（東京大学・筑波大学共同スーパーコンピュータ）を利用することで、250 原子系という大規模モデルに対しても、6 日間で約 3300 MD ステップの第一原理 MD 計算を実施することが可能となった。

これにより、従来の 128 原子の比較的小さな構造モデルでは統計精度の観点から十分に取り扱うことが困難であった Sn や Mo などの微量元素を含む実組成系についても解析可能となり、急冷凝固過程における元素拡散や局所構造形成をより実材料に近い条件で評価できるようになった。このように、学際共同利用プログラムによる先進的計算資源の利用は、本研究の大規模化・高精度化を支える重要な基盤となった。

### 4. 今後の展望

今後は、Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo 合金および Mg-Zn-Y 合金について、より長時間かつ大規模な MD シミュレーションを実施し、冷却速度と局所構造形成との関係を系統的に明らかにする予定である。特に、短距離秩序形成や元素偏析が、最終的な相形成および機械特性へ与える影響について詳細に解析する。

また、Mg-Zn-Y 合金については、機械学習ポテンシャルをさらに高精度化し、粘性値や熱伝導率などの輸送特性をより高精度に予測することで、熱流体シミュレーションとの連携を強化する予定である。さらに、将来的には積層造形プロセスや急冷凝固プロセスにおける微細組織形成予測へ展開し、軽金属材料の高性能化およびプロセス最適化への応用を目指す。

### 5. 成果発表

#### (1) 学術論文

該当なし

#### (2) 学会発表

- 圓谷貴夫 「第一原理計算と機械学習型 MD 法による長周期積層構造を有する Mg 合金の形成メカニズムの解明」, 日本鉄鋼協会九州支部/日本金属学会九州支部共催 2025 年度春季講演会, オンライン開催, 2025 年 4 月 24 日.

- Takao Tsumuraya, Kohei Shimamura, Soya Nishimoto, Akihide Koura, Fuyuki Shimojo, Yoshihito Kawamura, “Structural and Dynamical Properties of Mg-Zn-Y Alloys During Rapid Cooling: A Combined First-Principles and Machine-Learning Potential Study”, The 20th International Conference on Strength of Materials (ICSMA20), Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan, 2025 年 6 月 2~6 日(発表日:6/4).
- 圓谷貴夫, 島村孝平, 高良明英, 下條冬樹, 河村能人, 「機械学習ポテンシャルによる Mg-Zn-Y 過冷却液体の粘性とガラス転移の組成依存性の解明」, 日本金属学会 2025 年秋期(第 177 回)講演大会, 北海道大学札幌キャンパス, 北海道札幌市, 2025 年 9 月 17-19 日(発表日:9/19).
- 高島愛, 圓谷貴夫, 白石貴久, 木口賢紀, 「第一原理分子動力学法による  $Ti_6Al_2Sn_4Zr_2Mo$  合金の凝固メカニズムの解明」“First-principles molecular dynamics simulation of the solidification behavior of  $Ti_6Al_2Sn_4Zr_2Mo$  alloy”, 第 35 回日本 MRS 年次大会, 北九州国際会議場, 福岡県北九州市, 2025 年 11 月 10-12 日(発表日:11/10).

(3) その他

使用計算機	使用計算機に○	配分リソース※		
		当初配分	移行*	一般利用による追加
Pegasus	○	14,400		
Miyabi-G	○	40,500		
Miyabi-C	○	5,760		
※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。 *バジェット移行を行った場合、「+2000」「-1000」のように記入				