

# 博 士 論 文

## データ科学とフェーズフィールド法の 融合による多結晶材料組織予測手法の開発

Prediction method of polycrystalline microstructure

by integrating data science and phase-field method

東京農工大学 大学院工学府  
機械システム工学専攻

石 井 秋 光

# 目次

第 1 章 緒論	1
1.1 研究背景	1
1.1.1 多結晶材料の特性とマイクロ組織の関係	1
1.1.2 数値シミュレーションによる多結晶組織予測	2
1.1.3 マテリアルズインフォマティクス	3
1.1.4 フェーズフィールド法の課題とデータ科学の応用	3
1.2 本研究の目的	6
1.3 本研究の対象とする現象の背景	6
1.3.1 固相焼結による多結晶組織形成	6
1.3.2 エレクトロマイグレーションによる多結晶組織変化と欠陥形成	8
1.4 本論文の構成	11
第 2 章 基礎理論	13
2.1 固相焼結フェーズフィールドモデル	13
2.1.1 固相焼結の基礎原理	13
2.1.2 秩序変数と全自由エネルギー	14
2.1.3 時間発展方程式の導出	15
2.2 エレクトロマイグレーションによるボイド移動解析	
マルチフェーズフィールドモデル	17
2.2.1 エレクトロマイグレーションの基礎原理	17
2.2.2 秩序変数と全自由エネルギー	18
2.2.3 時間発展方程式の導出	20
2.3 4次元変分法に基づくデータ同化	26

2.3.1	状態ベクトルと観測ベクトル .....	26
2.3.2	4次元変分法 .....	27
2.3.3	アンサンブル4次元変分法 .....	28
2.4	ベイズ最適化 .....	31
2.4.1	ガウス過程回帰 .....	31
2.4.2	獲得関数 .....	33
2.4.3	最適化計算のフローチャート .....	34

### 第3章 データ同化による固相焼結の材料パラメータの

	高精度推定技術の開発 .....	36
3.1	緒言 .....	36
3.2	固相焼結フェーズフィールドシミュレーションへの アンサンブル4次元変分法の実装と双子実験 .....	37
3.2.1	双子実験の概念 .....	37
3.2.2	状態ベクトルと観測ベクトルの定義 .....	38
3.2.3	疑似観測データ .....	39
3.3	最適アンサンブルサイズの決定 .....	42
3.4	状態推定およびパラメータ推定結果の評価 .....	45
3.5	パラメータ推定精度の高精度化手法の検討 .....	48
3.6	観測データの時間間隔が推定精度に及ぼす影響の調査 .....	49
3.7	結言 .....	52

### 第4章 ベイズ最適化を利用した新しいデータ同化手法の開発 .....

4.1	緒言 .....	53
4.2	非逐次データ同化へのベイズ最適化の応用 .....	53

4.3	双子実験の条件.....	55
4.4	活用戦略と探索戦略のトレードオフが推定結果におよぼす影響調査.....	61
4.5	アンサンブル4次元変分法との推定結果の比較による 新データ同化手法の低い計算コストの実証.....	63
4.6	結言.....	66

## 第5章 新開発のマルチフェーズフィールドモデルを用いた

### エレクトロマイグレーションによる

### ボイド移動シミュレーション..... 67

5.1	緒言.....	67
5.2	数値シミュレーション条件.....	67
5.3	マルチフェーズフィールドモデルの妥当性評価.....	69
5.4	粒界通過時のボイドと多結晶組織の変化.....	71
5.5	粒界の物性値による粒界におけるボイドの体積変化の調査.....	73
5.6	矩形多結晶配線における配線の断線位置の評価.....	78
5.7	結言.....	82

## 第6章 ベイズ最適化を用いる新データ同化手法を活用した

### 多結晶配線内の粒界分布推定手法の開発..... 83

6.1	緒言.....	83
6.2	目的関数の定義.....	83
6.3	観測データの作成.....	84
6.4	粒界分布の推定方法の検討.....	85
6.5	数値シミュレーション条件.....	87

6.6	粒界分布の推定結果.....	89
6.7	結言.....	92
第 7 章	ベイズ最適化アプリケーションの開発.....	93
7.1	緒言.....	93
7.2	アプリケーションの詳細.....	94
7.2.1	アプリケーションの構成.....	94
7.2.2	アプリケーションの機能.....	95
7.3	使用例.....	98
7.4	期待される社会的影響.....	103
7.5	結言.....	103
第 8 章	結論.....	104
参考文献	.....	107
関連学術論文および学術講演	.....	125
謝辞	.....	129

# 第 1 章

## 緒論

### 1.1 研究背景

#### 1.1.1 多結晶材料の特性とミクロ組織の関係

金属材料やセラミックスなどの結晶構造を有する材料は、実用においては大多数が多結晶材料として使用される。これは、一般的な材料の製作工程で生じる溶融金属の凝固や圧延、焼結などのプロセスにおいては、材料内で自然と多結晶のミクロ組織が形成されるためである [1, 2]。一方で、単結晶材料を作製するためには、特殊な製法 [3, 4] を使用する必要があるため、作製コストは多結晶材料の作製コストと比較して高い。そのため、単結晶材料はジェットエンジンのタービブレード [5, 6] のように特殊な環境下で高強度が求められる部品などには使用されるが、身の回りに存在する輸送機器のボディや、電子機器内部の配線などの製品・部品は、ほとんどが多結晶構造を有する。また近年では、高温超伝導材料 (High Temperature Superconductors: HTS) のように従来は単結晶材料としての応用が進んでいた材料においても、その作製の容易さや作製コストの低さに着目し、多結晶材料としての応用を目指す動きが活発化している [7-9]。

多結晶材料が示す機械的特性や電気的特性、もしくは多結晶組織を有する材料を用いた製品・部品の故障特性などの様々な特性は、材料内部のミクロ組織に強く依存する [10]。したがって、多結晶材料内部のミクロ組織を制御することは、所望の材料特性を向上するために重要な役割を果たす。例えば、先に挙げた多結晶型 HTS では、材料内に存在する結晶方位差の大きな粒界で電流が妨げられる [7, 11-13] ため、高い電流輸送特性を有する多結晶型 HTS の開発のためには、材料作製過程での粒界形成を制御することが重要となる。

多結晶材料のミクロ組織制御を目的として、凝固、粒成長、再結晶、焼結などのプロセスで形成される多結晶ミクロ組織を観察する実験研究が行われてきた [14-17]。特に近年では実験技術の発展により、材料で生じるミクロ組織形成のその場観察や、材料内部のミクロ組織を観察可能な非破壊の 3 次元観察が行われている。Cai ら [18] は、X 線コンピュータトモグラフィ (Computer Tomography: CT) を使用してアルミニウム合金凝固の 3 次元その場観察を行い、凝固中の材料内部で生じる複雑な組織形成過程を明らかにした。Jin ら [19] は、後方散乱電子回折 (Electron BackScatter Diffraction: EBSD) を使用したその場観察を行い、純ニッケル表面での再結晶および粒成長過程のミクロ組織変化を明らかにした。Sun ら [20] は、実験室用回折コントラスト断層撮影装置 (Laboratory Diffraction Contrast Tomography: LabDCT) により、再結晶で形成された結晶方位分布を 3 次元で取得することに成功した。

しかしながら、実験で観察される多結晶ミクロ組織の形成や変化は、材料の種類、温度、時

間、応力状態、雰囲気、前処理条件など多数の要素が複雑に相互作用することで生じる。したがって、実験によりマイクロ組織の制御指針を獲得し、材料の特性向上を目指す際には、実験条件を少しずつ変更して実験を重ねるような試行錯誤が必要となる。そして、この試行錯誤には大きな時間的・人的・金銭的なコストを要する。

多結晶材料のマイクロ組織を制御するための指針を、少ない実験コストで獲得するためには、大きな枠組みとして 2 種類の方策が挙げられる。1 つは、計算科学と材料科学を組み合わせた計算材料科学に基づいた方策であり、数値シミュレーションを使用して多結晶マイクロ組織形成を予測する手法である。計算材料科学は既に半世紀程度の歴史があり [21]、近年では計算機性能の向上や数値シミュレーションモデルの発展に伴い、大規模かつ高度な材料数値シミュレーションが行われている。もう 1 つは、特に近年多くの注目を集めているデータ科学を材料科学と組み合わせる材料開発方策である。データ科学とは、数学や統計学などを活用したデータ処理により、蓄積したデータから有益な情報や知見を引き出す学術体系 [22-25] である。また、材料科学、データ科学、計算科学を組み合わせた新しい研究手法は、マテリアルズインフォマティクス (Materials Informatics: MI) [26-28] と呼ばれ、社会的にも広く認知が進んでいる [29, 30]。特に、実験プロセスをデータ科学により最適化することは、プロセスインフォマティクスと呼ばれることもある。以降では、計算材料科学と MI について、近年の世界的な研究の動向についてそれぞれ説明する。

### 1.1.2 数値シミュレーションによる多結晶組織予測

計算材料科学の分野において、多結晶材料のマイクロ組織形成や、マイクロ組織内部で生じる物理現象を予測するための数値シミュレーション手法は複数開発されている。代表的な手法としてはセル・オートマトン (Cellular Automaton: CA) 法 [31, 32] やモンテカルロ (Monte Carlo: MC) 法 [33, 34] が存在する。それぞれの一例としては、Ding ら [35] は CA 法により、動的再結晶中に生じるマイクロ組織変化と、動的再結晶粒の核生成および成長速度を予測した。Rodgers ら [36] は MC 法を使用して、金属の付加造形 (Additive manufacturing) で形成されるマイクロ組織を予測した。Wang ら [37] は、CA 法と MC 法を組み合わせた焼結シミュレーション手法を提案し、焼結によって形成されるマイクロ組織を予測した。しかしながら、CA 法は、粒界や表面などの界面を取り扱うことが難しく、特に界面の 3 重点においては複雑な計算処理が必要となる。また、MC 法は現象の速度と実時間の関連付けが難しい。加えて、CA 法と MC 法はいずれも、界面の曲率の効果をシミュレーション結果に反映することが困難である。

これに対し、多結晶マイクロ組織形成のような自由境界問題を解くための強力な数値シミュレーション手法として、フェーズフィールド (Phase-Field: PF) 法 [38] が開発されている。PF 法は、実空間・実時間で予測が可能な手法であり、有限の幅を持つ界面内で状態が滑らかに変化するという拡散界面モデルに基づいている。PF 法では、界面を比較的容易に扱うことができ、界面 3 重点はそれぞれの界面エネルギーを考慮して自然に表現される。また、界面の曲率の効果は、特別な計算処理がなくともシミュレーション結果に反映される。このように優れた性質を有することから、PF 法は凝固 [39, 40] や粒成長 [41, 42]、焼結 [43, 44] など

じるマイクロ組織形成を予測するために用いられている。また PF 法は、熱力学第 2 法則に基づき全自由エネルギーを最小化するように、系の状態発展をモデル化する。そのため、予測の対象とする状態変化に関連するエネルギー量を評価し、それらエネルギー量の和を最小化するようにモデル化することで、複数の物理現象を連成解析することも可能である。実際に近年では、材料内の応力変化 [45]、相変態 [46]、液相流動 [47]、き裂進展 [48]、電気化学反応 [49] などを連成することで、現実で生じる複雑なマルチフィジックス現象を予測することが可能になりつつある。

### 1.1.3 マテリアルズインフォマティクス

材料研究にデータ科学を応用し、材料開発や材料試験の高効率化や省コスト化、実験プロセスの最適化などを目指す MI が活発化している。MI で使用されるデータ科学手法としては、ニューラルネットワーク (Neural Network: NN) [50] やランダムフォレスト [51] などの機械学習や、スパースモデリング [52]、クラスタリング [53]、データマイニング [54] などが存在する。機械学習は、材料科学の分野では、多結晶マイクロ組織の予測 [55, 56]、実験で取得される観察画像の処理 [57, 58]、相や粒界、結晶構造の分類 [59, 60] など、様々な用途で使われている。一例としては、Takahashi ら [61] は、ランダムフォレストやクラスタリングを使用して、15000 個のデータから太陽電池への応用が期待されるペロブスカイト材料の特性の予測や、新しいペロブスカイト材料の予測を行った。

ベイズ最適化 (Bayesian Optimization: BO) [62, 63] も、MI で使用されるデータ科学手法の一つである。BO は、高次かつ微分不可能な未知関数の最小値や最大値を、比較的少ない試行で効率的に見つけることができるデータ駆動の最適化手法である [62]。所望の材料特性を最大化するような問題設定の下で材料研究に応用され、BO による高性能材料の探索 [64, 65] や実験プロセスの最適化 [66, 67] などの研究が行われた。Yamawaki ら [64] は、BO を使用することで、電熱材料の特性向上に成功した。Subianto ら [67] は、ポリマーを使用した材料開発プロセスを、BO を用いて最適化することで高疎水性材料を開発した。Terayama ら [68] は、BO を利用した三相系材料の相図を作成可能なアプリケーションの開発を行っており、このようなアプリケーションによって MI はますます広がりを見せている。

実験研究のみならず、計算材料学の分野でもデータ科学の応用研究が活発に行われている [69-71]。前項に述べた PF 法に関連する研究としては、Gaswami ら [72] は、PF シミュレーションと NN を組み合わせた、き裂進展の予測モデルを提案した。Shen ら [73] は、PF シミュレーションと機械学習の融合により、材料特性を最適化する計算の枠組みを開発した。本研究で使用するデータ同化 [74] もデータ科学手法の一つであり、したがって本研究も MI による研究に分類される。

### 1.1.4 フェーズフィールド法の課題とデータ科学の応用

前述のように、PF 法はマイクロ組織の形成や変化を予測するための強力な数値シミュレーション手法である。しかしながら、PF 法を用いて多結晶材料のマイクロ組織形成を定量的に予測



するためには、対象とする材料についての正確なエネルギー量の評価と、適切な物性値やモデルパラメータが複数必要である。物性値やモデルパラメータなどの材料パラメータは、先行研究により取得された文献データやデータベース（例えば The Materials Project [75] など）を活用するか、新たに実験や第一原理計算、分子動力学 (Molecular Dynamics: MD) シミュレーションを実施することで取得できる [76-83]。しかしながら、PF シミュレーションに必要なすべての材料パラメータについて既にデータが揃っていることは稀である。実験や第一原理計算、もしくは MD シミュレーションを行うことで、すべての材料パラメータを取得することも、実験や計算のコストや技術的な側面から難しい。例えば、多結晶組織予測で用いる材料パラメータの一つである粒界エネルギーを、9 つの自由度をもつ粒界構造 [84] に対し網羅的に第一原理計算や MD シミュレーションを行って決定することは困難である。また、PF シミュレーションで得られる結果は、シミュレーションの初期状態にも依存する。そのため、実験で観察された状態変化をシミュレーションで再現するためには、材料パラメータのみならず、初期状態も現実にも即した条件に設定する必要がある。しかしながら、材料内部のマイクロ組織の情報を実験によって非破壊で得るためには、Sun ら [20] が使用した LabDCT などの、X 線 CT を使用する高度な実験設備や技術を要する。

このような PF 法の課題を克服するために、データ科学を使用する試みが着目されている。Yin ら [85] は、NN と PF シミュレーションを組み合わせ、生体材料の未知の材料パラメータを予測した。岡田ら [86] は固相焼結を対象に、PF シミュレーションの結果と実験のその場観察結果を比較し、BO を使用して両者が一致するように PF モデルで使用する材料パラメータを最適化する手法を開発した。また、PF シミュレーションに使用する初期状態も、データ科学の応用により高度な実験設備を用いずに取得可能となることが期待される。例えば Kench ら [87] は NN を使用し、1 枚の多結晶組織の 2 次元像から、材料内の 3 次元の多結晶組織を推定する技術を開発した。しかしながら、NN を使う手法は、機械学習を行うために多くのデータが必要となる。学習のためのデータとして PF シミュレーションの結果を用いる場合、PF シミュレーションの計算コストの大きさと、学習のためのデータセットの作製のために膨大な時間がかかる。実験データを使用する場合は、NN の訓練のための実験が多数必要となる。また、BO を利用したパラメータ推定は、BO によって最適化する目的関数の定義方法によって推定結果が変化するという課題が残る。

一方で、データ同化を PF シミュレーションと組み合わせることで、材料内部のマイクロ組織などの実験では観測できない状態や未知の材料パラメータを、実験データに基づき推定することが可能であることが示されている [88-96]。データ同化は、ベイズ推論に基づき、数値シミュレーションモデルと実験データを統合する計算技術である [74]。データ同化では、シミュレーションモデルの状態変数や実験データが確率密度分布 (Probability Density Function: PDF) に従うと仮定する。この仮定により、データ同化は数値シミュレーションモデルや実験データに含まれる誤差による不確かさを考慮した状態推定や材料パラメータの推定が可能であるという利点も有する。

データ同化のスキームは、アンサンブルカルマンフィルタ (Ensemble Kalman Filter: EnKF)

[97, 98] を代表とする逐次データ同化手法と、4 次元変分法 (Four-dimensional Variational method: 4DVar) [99, 100] を代表とする非逐次データ同化手法に分類される. Sasaki ら [88] は, EnKF を Fe-C-Mn 合金の等温 $\gamma$ - $\alpha$ 変態の 1 次元 PF シミュレーションに適用し, 変態速度を決定する易動度を推定した. Ohno ら [90] は, EnKF を用いて純鉄凝固の 2 次元 PF シミュレーションと MD シミュレーションから得られた観測データを組み合わせ, 固液界面エネルギーや異方性パラメータを推定した. 逐次データ同化手法は, PF シミュレーションモデルへの実装が容易であり, シミュレーションモデルや推定パラメータを変更しても柔軟に対応できるという長所を持つ. しかしながら, PDF をアンサンブル近似によって十分な精度で近似するためには, 大きな計算コストを要する. また, シミュレーションの初期状態を直接的に推定することはできず, スムーザー [101] と呼ばれる時間を遡る処理を加えることや, 逐次的な推定を何度も反復して行うことによる初期状態の最適化 [102] が必要となる.

非逐次データ同化手法である 4DVar は, 実験で得られる時系列観測データの時間範囲全体を評価して, 観測データとシミュレーション結果の時間変化が最もよく整合するようなシミュレーションの初期状態を推定する手法である. 4DVar は多様な観測データや物理的拘束条件を用いることが可能な点に利点をもつ [99, 103]. 加えて, 計算コストは逐次データ同化手法と比較し小さい. Ito ら [95, 96] は, 4DVar と Second-order アジョイント法 [104] に基づく新しいデータ同化手法を開発し, 合金凝固 PF シミュレーションや多結晶粒成長 PF シミュレーションに適用することで, 最適な推定値とその不確かさを評価可能であることを実証した. 4DVar は強力なデータ同化手法である一方で, 本論文の第 2 章でも説明するように, PF モデルへの実装が難しいことが課題である. この課題を解決するために, EnKF のアンサンブル近似を用いる考えを 4DVar に採用した, アンサンブル 4 次元変分法 (En4DVar) [105, 106] が開発された. しかしながら, 著者の知る限りでは, En4DVar を基礎とするデータ同化を PF シミュレーションに適用した先行研究は存在しない. また, En4DVar はアンサンブル近似を用いるため, 状態や材料パラメータを推定するために必要となる計算コストは大きいという問題も有する. したがって, PF シミュレーションとデータ同化を組み合わせることによる多結晶材料組織の定量的予測を推進するためには, 4DVar よりも実装が容易かつ計算コストの低いデータ同化手法の開発が重要となる.

## 1.2 本研究の目的

本研究の目的は、多結晶材料のマイクロ組織の形成と変化を定量的に予測するための、データ同化と PF シミュレーションを融合した新しい数値計算技術を開発することである。本研究の目的を遂行するために、本論文では、En4DVar と PF シミュレーションを組み合わせた新しい数値計算の枠組み (En4DVar-PF モデル) を開発する。そして En4DVar-PF モデルを用いて、現象を定量的に予測するために必要となる PF シミュレーションの初期状態や材料パラメータを推定可能とする。また、低い実装難度と計算コストを両立した状態および材料パラメータ推定を実現するために、BO を応用した新しいデータ同化手法 (DMC-BO) を開発する。加えて、DMC-BO の推定結果の理解を助けるとともに、MI による材料研究のさらなる加速に貢献するために、BO の実行とその最適化結果の可視化を容易に行うことが可能な BO 用アプリケーション BOXVIA を開発する。

本論文では、新たに開発する En4DVar-PF モデルおよび DMC-BO を適用する対象として、2 種類の現象を選択する。1 つ目は、多結晶組織が形成されるプロセスである固相焼結とする。2 つ目は、既に形成されたマイクロ組織がその後の時間発展に作用する現象である、エレクトロマイグレーション (EM) によるボイド移動現象を選択する。両者それぞれの現象を予測するための PF シミュレーションに En4DVar-PF モデルや DMC-BO を適用し、材料パラメータや初期状態を推定する。これにより、本研究で開発する、データ科学に基づいた多結晶材料のマイクロ組織予測技術の有効性を実証する。次節では、これら研究対象とする現象の背景についてそれぞれ説明する。

## 1.3 本研究の対象とする現象の背景

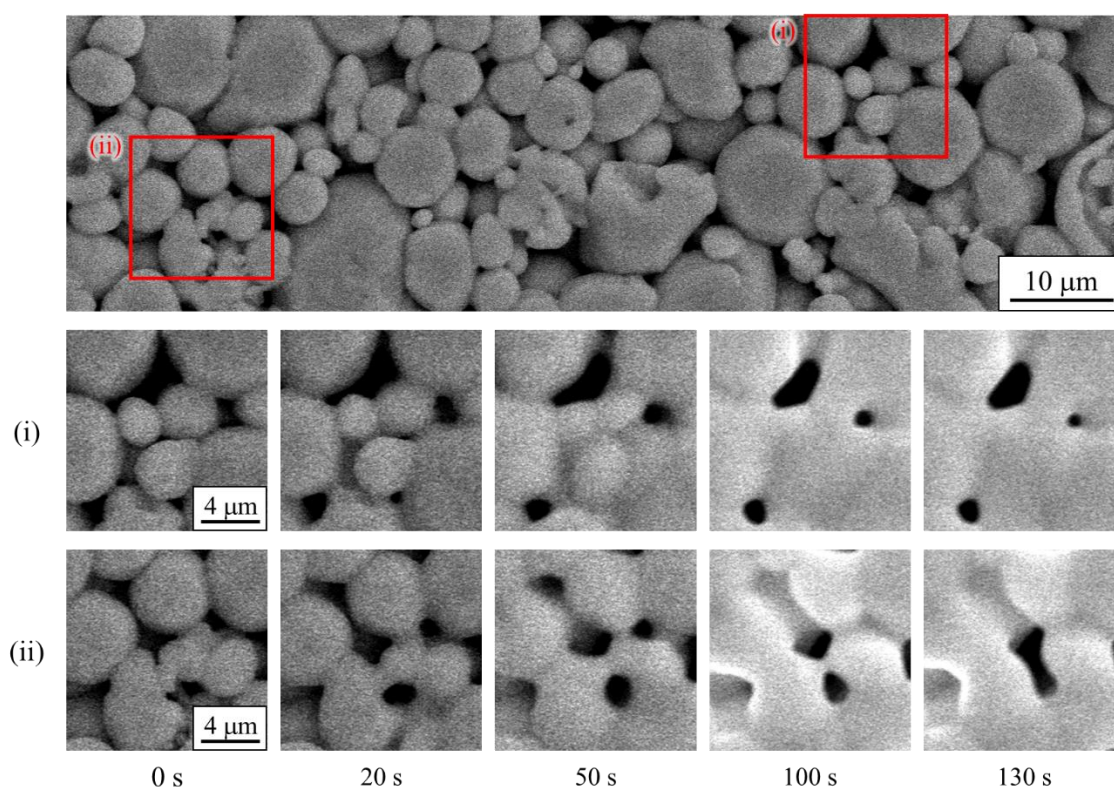
### 1.3.1 固相焼結による多結晶組織形成

固相焼結は、粉末材料を加熱して緻密な固体を作成する材料作製技術の一つである [107, 108]。焼結技術は粉末冶金やセラミックス産業において根幹となる技術であり、近年では、多結晶型高温超伝導材料 [109, 110] や核燃料材料 [111] の作製など、ますます多様な材料の作製に用いられている。加えて、焼結技術は付加造形 [112] の基盤技術としても注目を集めている。

固相焼結中に生じる材料のマイクロ組織変化を観察する研究は、多数報告されてきた [113-120]。Asoro ら [115] は、高角環状暗視野 (High-Angle Annular Dark-Field: HAADF) 検出器を使用して、プラチナナノ粒子焼結の 2 次元その場観察を行った。また、3 次元での非破壊その場観察も行われた。Bernard ら [118] は、X 線コンピュータマイクロ断層撮影法により、ガラス粉末と結晶化したホウ酸リチウム ( $\text{Li}_6\text{Gd}(\text{BO}_3)_3$ ) の焼結中の 3 次元的なマイクロ組織変化を測定した。また、McDonald ら [119] は、LabDCT により焼結中の銅粉末の粒子の回転や粒成長を 3 次元で測定した。

Figure 1.1 には、本研究で実施した共同研究において、波多・斉藤ら (九州大学) が走査型

電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) を使用して観察した、銀粒子焼結のその場観察結果を示す。上段の SEM 像内の、赤枠で示される 2 つの領域(i), (ii)における、固相焼結過程の時間変化が下段に示されている。(i)に示す領域では、領域中心部に存在する 3 つの銀粒子が、焼結によって結合する変化が明瞭に観察された。また、焼結による焼結体の緻密化が進行し、粒子周囲の空隙が時間経過とともに減少する現象が観察された。(ii)に示す領域では、材料内で局所的に生じる焼結粒子間のネック分離現象も観察された。このように、固相焼結は、最近の先進的な実験観察技術を用いれば、その場観察実験が可能であり、実験によって得られる結果は焼結過程の解明と理解のために有用な多くの知見をもたらす。一方で、これらの実験によって観察される固相焼結現象は、複数の経路を通じた原子の拡散、原子の移動に起因する粒子の剛体運動、材料内の応力状態や空孔濃度などの要素が互いに相互作用する複雑な現象である [107, 108]。そのため、1.1 節で述べたように、実験で得られる知見のみから、固相焼結過程で生じる多結晶マイクロ組織形成を高精度に予測する術を確立することは難しい。



**Fig. 1.1** SEM images obtained from an in-situ observation for solid-state sintering of silver particles.

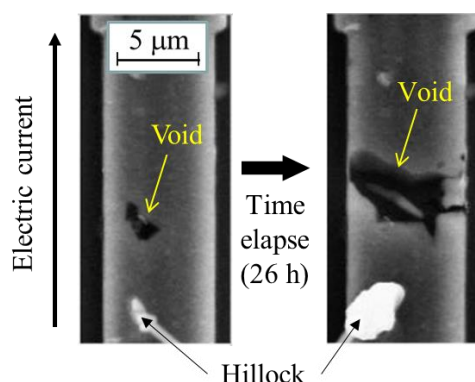
固相焼結中のマイクロ組織形成を予測するために、CA 法や MC 法を使用した数値シミュレーションが行われてきた [37, 121, 122]。特に近年では、PF 法を用いた数値シミュレーションモデルの研究開発が活発に行われている [43, 44, 123-137]。Wang [43] は、複数経路の原子拡散と粒子の剛体運動を解析し、材料の緻密化と粒成長を表現可能な固相焼結 PF モデルを提案した。この PF モデルは粒子の剛体運動を計算することで、材料の巨視的収縮を表現可能な点で

特に優れており、多くの研究で使用される PF モデルの基礎となった. Biswas ら [124, 125] は, Wang の PF モデルを応用し、固相焼結で生じる応力場や焼結粒子の結晶方位を考慮した固相焼結 PF シミュレーションを行った. 3 次元での PF シミュレーションも報告されており, Hötzer ら [126] は、約 25000 個の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子の 3 次元固相焼結シミュレーションを行い、3 次元的なマイクロ構造変化を調査した.

PF シミュレーションにより、現実で生じる固相焼結中のマイクロ組織形成を定量的に予測するためには、界面エネルギーや原子の拡散係数などの複数の物性値や、材料の緻密化速度を決定する PF モデルパラメータが必要である. そこで本研究では、新しく開発する En4DVar-PF モデルおよび DMC-BO を固相焼結 PF シミュレーションに適用することで、実験ではその場観察が難しい材料内部の粒界分布などの状態と、固相焼結過程におけるマイクロ組織形成を PF シミュレーションで定量的に予測するために必要となる複数の物性値とパラメータを推定する技術を開発する.

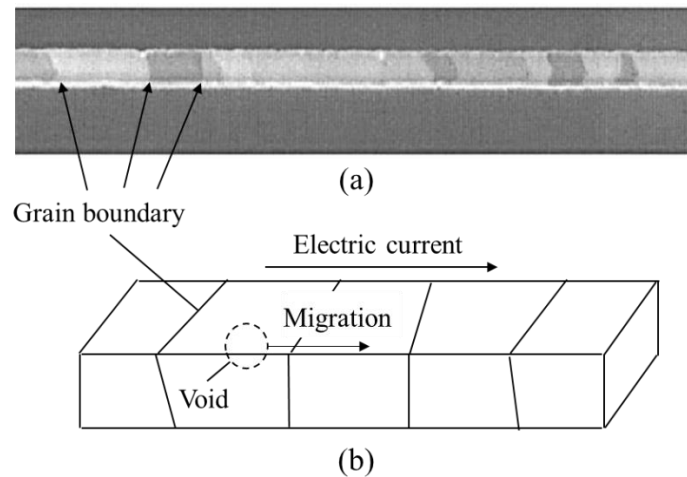
### 1.3.2 エレクトロマイグレーションによる多結晶組織変化と欠陥形成

パソコンやスマートフォンなどの電子機器に含まれる大規模集積回路 (LSI) は、トランジスタやコンデンサ、抵抗、ダイオードなどの素子が集積して構成され、微細加工技術の発展により、これらの素子の微細化と LSI の高集積化が進んでいる. それに伴い、LSI 内部の配線幅が減少した結果、配線に印加される電流密度が増大し、配線内で発生するエレクトロマイグレーション (Electromigration: EM) による故障問題が顕在化している [138]. EM により、配線中にはボイドと呼ばれる原子の存在しない場所や、ヒロックと呼ばれる移動した原子が堆積する場所が発生する. **Figure 1.2** には、Buerke ら [139] によって観察された、EM によって成長したボイドとヒロックの SEM 像を示す. EM により発生したボイドは成長することで、配線の抵抗増加やそれに伴う配線の温度上昇による溶断を引き起こす. また、ヒロックは成長することで、配線を覆う絶縁膜を破壊し短絡を発生させる. このうち、特にボイドは EM によって配線内を移動することが知られており、EM による故障位置の予測が難しい要因となっている.



**Fig. 1.2** SEM images showing voids and hillocks in aluminum interconnect line grown by Electromigration [139].

近年の LSI に含まれる、微細化が進む配線では、配線幅が配線を構成する結晶粒径よりも配線幅が細くなったことから バンブー構造を有する [140-142]. **Figure 1.3 (a)**に、Huang ら [142] によって収束イオンビーム (Focus Ion Beam: FIB) を使用して観察された、バンブー構造を有するアルミニウム配線を示す. また **Fig. 1.3 (b)** には、理想的なバンブー構造内で EM により移動するボイドの模式図を示す. バンブー構造は、一般的な多結晶組織と比較して粒界が少なく、粒界は電流の方向に対し垂直に存在することが多い [143]. そのため、バンブー構造を有する配線では粒界における原子の移動が発生しにくく、結晶粒の内部において EM によるボイドの移動や形状変化が生じる. したがって、LSI の信頼性向上や、配線の更なる微細化のためには、バンブー構造を有する多結晶配線を対象とした、ボイドの移動や形状変化を明らかにすることが求められる.



**Fig. 1.3** (a) Aluminum interconnect line having bamboo structure observed by FIB [142]. (b) Schematics of ideal bamboo structure and a migrating void induced by EM.

バンブー構造を有する配線におけるボイドを実験で観察する研究は数多く行われてきた [144-147]. Marieb ら [144] は、アルミニウム配線の表面で発生するスリット状のボイドと、配線構造の差によるボイドの成長の差を観察した. また, Mayer ら [145] は微細な銅配線を対象に、直角に曲がったビア部においてボイドが成長した配線の断面と、配線の表面でボイドが成長する時間変化を観察した. しかしながら、これらの実験観察では、いずれもボイドの移動や変形は配線の表面のみで観察でき、配線の内部のボイドは EM 試験後の断面でのみ観察可能である. 言い換えれば、配線の内部で生じるボイドの移動や形状変化の過程を実験で直接観察することは困難である.

そのため、数値シミュレーションを用いて EM によるボイド移動を予測する研究が活発に行われている [148-155]. Arzt ら [148] は、単結晶のアルミニウム配線において、ボイドの移動を表す有限要素モデルを構築した. Kraft ら [149] は、このモデルを発展させ、単結晶アルミ



ニウム配線内のスリット状のボイドが EM により成長する過程の、有限要素モデルを構築した. Fridline ら [150] はボイド表面の拡散係数の異方性とボイドの形状変化の関係について調査し、配線方向に対する結晶方位がボイドの移動や形状変化を決定づける重要な因子であることを報告した. Xia ら [151] は、弾性場を考慮可能な有限要素モデルを構築し、配線の残留応力によりボイドが分裂することを報告した. Zhang ら [152] は 弾性場を考慮可能な有限要素モデルを 3 次元に拡張し、単結晶アルミニウム配線内に存在する円柱状ボイドの移動の 3 次元シミュレーション結果を報告した.

EM によるボイドの移動および形状変化は、配線中の粒界分布に強く影響される [145]. Bower ら [153] は、多結晶銅配線における EM によるボイドの移動や形状変化を 2 次元で予測可能な有限要素モデルを提案した. また, Ogurtani ら [154] はボイドと粒界の変化を予測可能な有限要素モデルを構築し、バンブー構造を有するアルミニウム配線内でボイドが電流に垂直な粒界を通過する 2 次元シミュレーションを行った. しかしながら、これらの有限要素シミュレーションでは、ボイドの移動に伴う界面の明示的な追従を必要とする. 界面の明示的な追従が必要であると、特にボイドと粒界の相互作用を解析する際に、その接触点において特別な数値計算処理が必要となる. さらに接触点周囲では、複雑な有限要素メッシュの生成が必要となる.

近年では、ボイドの移動や形状変化に伴う界面の明示的な追従を必要とせず、より容易に界面の複雑な変化を表現可能な PF 法を用いたシミュレーションが注目されている. Mahadevan ら [156-158] は、単結晶の金属配線の自由端における EM によるスリット状ボイドの成長を 2 次元で予測可能な PF モデルを構築した. Bhate ら [159, 160] は、単結晶配線内の EM によるボイド移動を表現する PF モデルを構築し, Xia ら [151] のシミュレーション結果と高い精度で一致することを報告した. Kim ら [161] は、ボイドの移動を 3 次元的に予測可能な PF モデルを構築し、単結晶アルミニウム配線においてボイドが分離する 3 次元的のシミュレーション結果を報告した. Barrett ら [162] は、単一粒界でのボイドと粒界の相互作用を 2 次元で予測可能な PF モデルを提案した. Mukherjee ら [163] は、多結晶配線中の EM によるボイドの 3 次元的な形状変化を予測する PF シミュレーションを行った. しかしながら、著者の知る限りでは、任意の形状の多結晶配線内で生じる EM によるボイド移動とマイクロ組織変化を 3 次元で統一的に予測可能な PF モデルは存在しない.

そこで本研究では、多結晶配線内の EM によるボイド移動とマイクロ組織変化および電位分布変化を統一的に予測するための、新しいマルチフェーズフィールド (MPF) モデルを開発する. 開発した MPF モデルを使用してバンブー構造を有する多結晶銅配線内のボイド移動シミュレーションを行うことにより、多結晶配線内でのボイドと粒界の相互作用を明らかにする. さらに、MPF モデルに DMC-BO を適用することで、EM によって移動するボイドの移動経路や、ボイド成長による配線の断線位置を予測するために重要となる、シミュレーション初期状態の粒界分布を推定する.

## 1.4 本論文の構成

本研究では、多結晶材料のミクロ組織を定量的に予測することを目的として、データ科学と PF シミュレーションの融合による新しい数値計算技術を開発する。本論文では、開発した En4DVar-PF モデルと DMC-BO を、固相焼結 PF シミュレーションと、独自に開発した MPF モデルを使用した EM によるボイド移動シミュレーションに適用し、データ科学と PF シミュレーションの融合による新しい数値計算技術有効性を実証する。以下に本論文の構成と各章の概要を示す。

第 2 章の基礎理論では、本研究で対象とする 2 種類の現象を予測するために使用する PF モデルをそれぞれ示す。固相焼結の PF モデルは、Wang [43] によって提案されたモデルである。一方で、多結晶配線内の EM によるボイド移動を予測する MPF モデルは、本研究で独自に開発した新しいモデルである。また、本研究で開発する数値計算手法である En4DVar-PF モデルや、新しいデータ同化手法である DMC-BO の基礎となる、データ同化手法と BO の理論を説明する。

第 3 章では、En4DVar を固相焼結 PF シミュレーションに適用した En4DVar-PF モデルを用いて、固相焼結の状態と材料パラメータの推定を行う。En4DVar-PF モデルを検証するために、双子実験と呼ばれる数値実験を行う。双子実験を通じて、複数の材料パラメータを同時かつ高精度に推定するための、最適なアンサンブルメンバーの数を決定する。En4DVar-PF モデルで推定された材料パラメータの精度を検証し、推定精度を向上させるためのアンサンブル近似の条件を特定する。さらに、時系列観測データの時間間隔と観測データ数が推定精度に及ぼす影響を調査する。これにより、本研究で提案する En4DVar-PF モデルは、実験で取得される観測データを活用することで、実験で観察が困難な状態の時系列変化と複数の未知パラメータの同時推定が可能であることを示す。

第 4 章では、より低い計算コストで状態や材料パラメータの推定を可能とするために、新たなデータ同化手法として DMC-BO を開発する。そして、DMC-BO を固相焼結 PF シミュレーションに適用する。3 章と同じく双子実験により固相焼結の状態と材料パラメータの同時推定を行う。この双子実験を通じて、BO の局所最適化と大域探索のバランスを制御するパラメータの設定による、材料パラメータの推定精度と計算コストの変化を調査する。そして、低い計算コストで状態と材料パラメータの推定が可能な制御パラメータの設定を明らかにする。また、DMC-BO による推定精度と計算コストを、En4DVar-PF モデルを使用した場合のそれらと比較することで、低計算コストでの状態推定と材料パラメータ推定の実現における 4DVar-BO の有効性を実証する。

第 5 章では、本研究で独自に開発した、多結晶配線内の EM によるボイド移動を予測するための MPF モデルを用いた数値シミュレーションを行う。はじめに、配線内を移動するボイドの移動速度や、粒界とボイドが接触した際のそれぞれの形状変化を、解析解や先行研究と比較することで、MPF モデルの妥当性を検証する。次に、配線内の粒界でボイドの体積変化が生じるパラメトリックスタディを行うことで、EM によるボイドの成長により配線が断線する



条件を明らかにする。さらに、実際の LSI 内部に存在する、ビア近傍を模した矩形配線における EM によるボイド移動の 3 次元シミュレーションを行う。この結果から、本研究で構築した MPF モデルが、EM による断線位置予測に有効な数値シミュレーションモデルであることを示す。

第 6 章では、5 章で使用した MPF モデルに DMC-BO を実装し、実験で観察されたボイドが成長による配線の断線位置から、ボイドが成長する前の配線内の粒界分布を推定する。実際の実験データをデータ同化に使用するために行ったデータ処理や、DMC-BO により粒界分布を推定するための条件を説明する。そして、EM の実験から得られる 1 枚の実験画像を使用した、DMC-BO による粒界分布推定の結果を示す。この結果から、DMC-BO は EM によるボイド移動についての時系列の実験データが取得できない場合でも、実験で観察される断線位置を再現することが可能であることを示す。さらに、DMC-BO を用いたデータ同化で行われた最適化計算の結果を可視化し、4 章では明らかではなかった、DMC-BO のさらなる長所を示す。

第 7 章では、本研究で開発した、世界初の BO 用 GUI アプリケーションである BOXVIA について述べる。BOXVIA のアプリケーションとしての構成と、BO の実行および可視化の際に設定可能な機能を説明する。その後、サンプルデータを用いた BOXVIA の使用例を示す。そして、実験を主体とするような、プログラミングや数値計算に不慣れな研究者でも容易に使用可能な BOXVIA を開発する意義と、BOXVIA による BO の利用促進がもたらすと期待される学術的なインパクトを説明する。

最後に第 8 章では、本論文の結論と総括を述べる。

## 第 2 章

### 基礎理論

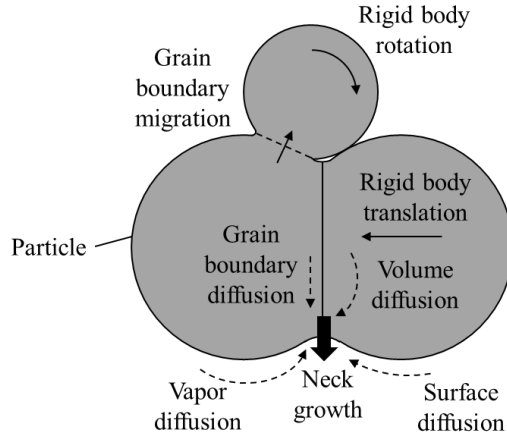
多結晶材料組織の高精度予測を実現するために、データ同化手法の一つであるアンサンブル 4 次元変分法 (En4DVar) やベイズ最適化 (BO) などのデータ科学技術を、フェーズフィールド (PF) シミュレーションと融合する。本研究では、En4DVar と PF シミュレーションを組み合わせた数値計算の枠組みとして En4DVar-PF モデルを開発する。さらに、新しいデータ同化手法として DMC-BO を開発する。本章では、En4DVar-PF モデルや DMC-BO の基礎となる En4DVar や BO と、これらの技術を固相焼結に適用する際に用いる固相焼結 PF モデルおよび多結晶配線内で生じるエレクトロマイグレーション (EM) によるボイド移動を予測するためのマルチフェーズフィールド (MPF) モデルを一括して示す。2.1 節では、本研究で使用する固相焼結 PF モデルを説明する。2.2 節では、多結晶配線内で生じる EM によるボイド移動を予測するための MPF モデルを示す。これら各節では、それぞれの PF モデルで現象を解析するために重要となる基礎原理についても概説する。2.3 節では、En4DVar およびその基礎となる 4 次元変分法 (4DVar) を導出する。2.4 節では、ベイズ最適化 (BO) の概念、理論および計算過程を述べる。

2.1 節の固相焼結 PF モデルは、先行研究 [43] で提案されたものである一方で、2.2 節に示す多結晶配線内の EM によるボイド移動を予測するための MPF モデルは、本研究で独自に開発した新しい数値シミュレーションモデルである。2.3 節および 2.4 節の En4DVar や BO は既に確立された手法であり、本研究ではこれらを応用して、En4DVar-PF モデルや DMC-BO を新しい数値計算の枠組みおよび手法として開発する。

#### 2.1 固相焼結フェーズフィールドモデル

##### 2.1.1 固相焼結の基礎原理

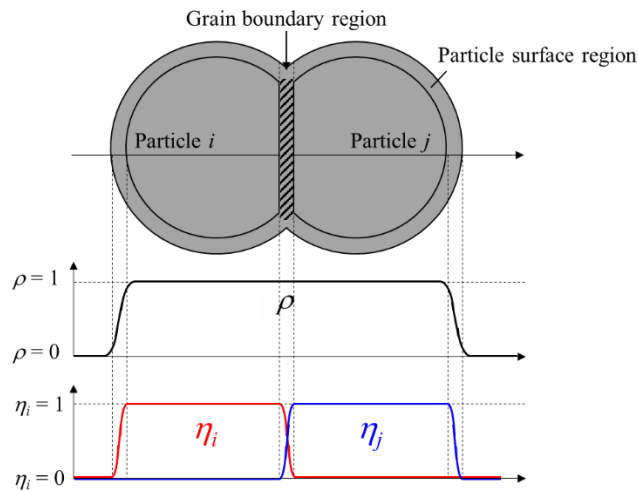
Figure 2.1 に、固相焼結の過程で生じる複数の物理現象を示す。焼結粒子間のネック成長や粒界移動、粒成長などを伴う焼結体内部のミクロ組織進展は、4 種類の経路による原子拡散によって生じる。拡散の種類はそれぞれ、体積拡散、気相拡散、表面拡散および粒界拡散である。加えて、粒界では原子空孔の過飽和が生じ、それによって粒子の剛体運動を引き起こす原子拡散が生じる [43]。並進運動と回転運動によって構成される粒子の剛体運動は、粒子の緻密化を導き、圧粉体を焼結することによる焼結体の高密度化の要因となる。



**Fig. 2.1** Schematic diagram of multiple physical phenomena occurring in a solid-state sintering.

### 2.1.2 秩序変数と全自由エネルギー

2.1.1 項で説明した固相焼結過程で生じる現象を解析するために、本研究では, Wang [43] によって提案された固相焼結 PF モデルを採用する. この PF モデルは, **Fig. 2.1** に示した 4 種類の原子の拡散と粒子の剛体運動を計算することで, 焼結体に生じるマイクロ組織進展と緻密化を同時に解析することが可能である. 固相焼結によって  $N$  個の粒子から形成されるマイクロ組織を解析するために, PF 変数として密度場  $\rho$  と方位場  $\eta_i$  ( $i = 1, 2, 3, \dots, N$ ) を定義する. **Figure 2.2** に,  $N=2$  つの粒子を表現する  $\rho$  と  $\eta_i$  の分布を示す.  $\rho$  は粒子の存在確率を表し,  $\eta_i$  はそれぞれの粒子を区別するために定義される.  $\rho$  と  $\eta_i$  は, 粒子の表面や粒界を表現する界面領域で, それぞれ 0 から 1 に滑らかに変化する.



**Fig. 2.2** Definitions of the density field,  $\rho$ , and orientation field,  $\eta_i$ , used in the PF model of solid-state sintering. The distributions of the variables along the solid arrow across the two particles are depicted in the lower graph.

系の全自由エネルギー $G$ は、 $\rho$ と $\eta_i$ を用いて次式で定義される。

$$G = \int_V \left\{ g_{\text{bulk}}(\rho, \eta_i) + \frac{\kappa_\rho}{2} |\nabla \rho|^2 + \sum_i^N \frac{\kappa_{\eta_i}}{2} |\nabla \eta_i|^2 \right\} dV \quad (2.1)$$

ここで、右辺被積分項の第1項 $g_{\text{bulk}}$ は、バルクの化学的自由エネルギー密度である。右辺被積分項の第2項と第3項は、それぞれ粒子表面および粒界に関する勾配エネルギー密度である。 $\kappa_\rho$ と $\kappa_{\eta_i}$ は勾配エネルギー係数である [124, 125]。  $g_{\text{bulk}}(\rho, \eta_i)$ は次式で表される[43, 44, 123-125]。

$$g_{\text{bulk}} = A\rho^2(1-\rho)^2 + B \left[ \rho^2 + 6(1-\rho) \sum_i^N \eta_i^2 - 4(2-\rho) \sum_i^N \eta_i^3 + 3 \left( \sum_i^N \eta_i^2 \right)^2 \right] \quad (2.2)$$

ここで、 $A$ と $B$ は、それぞれ粒子表面および粒界でのエネルギー障壁高さを決定する係数である [44, 123-125]。

### 2.1.3 時間発展方程式の導出

系の内部では、焼結中は質量保存則が成り立つと考えられるため、密度場 $\rho$ は積分値が一定である保存量と定義する。 $\rho$ の時間発展方程式は、Cahn-Hilliard 方程式 [164] に基づき、全自由エネルギーから次式のように導出される。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \nabla \cdot \left\{ M_\rho \nabla \left( \frac{\partial g_{\text{bulk}}}{\partial \rho} - \kappa_\rho \nabla^2 \rho \right) \right\} \quad (2.3)$$

ここで、 $M_\rho$ は拡散モビリティである。 $M_\rho$ は次式で定義する [124]。

$$M_\rho = M_{\text{vol}} q(\rho) + M_{\text{vap}} \{1 - q(\rho)\} + M_{\text{surf}} \rho^2 (1 - \rho)^2 + M_{\text{gb}} \sum_i^N \sum_{j \neq i}^N \eta_i \eta_j, \quad (2.4)$$

ここで、 $M_{\text{vol}}$ ,  $M_{\text{vap}}$ ,  $M_{\text{surf}}$ ,  $M_{\text{gb}}$ はそれぞれ、バルク、気相、粒子表面および粒界における拡散モビリティである。 $q(\rho)$ は内挿関数であり、 $q(\rho) = \rho^3(10 - 15\rho + 6\rho^2)$ と定義する。拡散モビリティは、それぞれの拡散経路を $X$  ( $X = \text{vol}, \text{vap}, \text{surf}, \text{gb}$ ) で表し、 $M_X = V_m D_X / RT$ と定義する [124, 165]。  $R$ は気体定数、 $T$ は絶対温度、 $V_m$ はモル体積である。 $D_X$ はそれぞれの拡散経路の原子の拡散係数である。

粒子の剛体運動を解析するために、式(2.3)に示す時間発展方程式に局所的な質量輸送を表す移流項を導入する。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \nabla \cdot \left\{ M_\rho \nabla \left( \frac{\partial g_{\text{bulk}}}{\partial \rho} - \kappa_\rho \nabla^2 \rho \right) - \rho \sum_i^N \mathbf{v}_{\text{adv},i} \right\} \quad (2.5)$$

ここで、 $\mathbf{v}_{\text{adv},i}$ は $i$  ( $i = 1, 2, 3, \dots, N$ ) 番目粒子の移流速度である。焼結過程における粒子の剛体運動は、並進と回転により構成される。したがって、 $\mathbf{v}_{\text{adv},i}$ は次式で与えられる。

$$\mathbf{v}_{\text{adv},i} = \mathbf{v}_{\text{tr},i} + \mathbf{v}_{\text{ro},i} \quad (2.6)$$

ここで、 $\mathbf{v}_{\text{tr},i}$  と  $\mathbf{v}_{\text{ro},i}$  はそれぞれ、 $i$  番目粒子の並進運動速度と回転運動速度である。 $\mathbf{v}_{\text{tr},i}$  は次式で定義する。

$$\mathbf{v}_{\text{tr},i} = \frac{m_{\text{tr}}}{V_i} \mathbf{F}_i \eta_i \quad (2.7)$$

ここで、 $m_{\text{tr}}$  は粒子の並進運動モビリティである。 $V_i$  は  $i$  番目粒子の体積を表す。 $\mathbf{F}_i$  は  $i$  番目粒子に作用する力であり、次式で与えられる。

$$\mathbf{F}_i = \int_V d\mathbf{F}_i \quad (2.8)$$

ここで、 $d\mathbf{F}_i$  は局所的な力密度であり、次式で定義する。

$$d\mathbf{F}_i = k_{\text{st}} \sum_{j \neq i}^N (\rho - \rho_0) \langle \eta_i \eta_j \rangle [\nabla \eta_i - \nabla \eta_j] d^3 r \quad (2.9)$$

ここで、 $k_{\text{st}}$  は剛性係数である。 $\rho_0$  は、粒界における平衡状態の  $\rho$  であり、粒界での空孔過飽和を模擬するために 1 よりもわずかに小さな値が設定される。 $\langle \eta_i \eta_j \rangle$  は次式のように定義する。

$$\langle \eta_i \eta_j \rangle = \begin{cases} 1 & (\eta_i \eta_j \geq c) \\ 0 & (\eta_i \eta_j < c) \end{cases} \quad (2.10)$$

ここで、 $c$  は方位場の積  $\eta_i \eta_j$  が粒界を表すことを判別する閾値である。 $i$  番目粒子の回転運動速度  $\mathbf{v}_{\text{ro},i}$  は次式で定義する。

$$\mathbf{v}_{\text{ro},i} = \frac{m_{\text{ro}}}{V_i} \mathbf{T}_i \times [\mathbf{r} - \mathbf{r}_{c,i}] \eta_i \quad (2.11)$$

ここで、 $m_{\text{ro}}$  は回転運動モビリティである。 $\mathbf{r}$  は任意の座標を示す位置ベクトル、 $\mathbf{r}_{c,i}$  は  $i$  番目粒子の重心座標を示す位置ベクトルである。 $\times$  は外積を意味する。 $\mathbf{T}_i$  は  $i$  番目粒子に作用するトルクであり、次式で与えられる。

$$\mathbf{T}_i = \int_V [\mathbf{r} - \mathbf{r}_{c,i}] \times d\mathbf{F}_i \quad (2.12)$$

焼結中には粒成長が生じ、それぞれの粒子の大きさは変化する。したがって方位場  $\eta_i$  は非保存量と定義する。したがって  $\eta_i$  の時間発展方程式は、Allen-Cahn 方程式 [166] に移流項を加えた次式のように表わされる。

$$\frac{\partial \eta_i}{\partial t} = -M_\eta \left( \frac{\partial g_{\text{bulk}}}{\partial \eta_i} - \kappa_\eta \nabla^2 \eta_i \right) - \nabla \cdot (\eta_i \mathbf{v}_{\text{adv},i}) \quad (2.13)$$

ここで、 $M_\eta$  は粒界移動のモビリティに相当するモデルパラメータである。

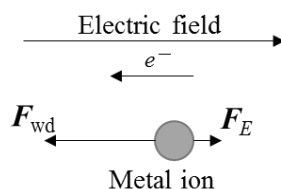
数値シミュレーションにおいては、式(2.5)と式(2.13)で表される  $\rho$  と  $\eta_i$  の時間発展方程式はいずれも、有限差分法によって離散化することで計算する。時間微分については 1 次精度のオイラー差分法を、空間微分については 2 次精度の中央差分法を用いて離散化する。

## 2.2 エレクトロマイグレーションによるボイド移動解析

### マルチフェーズフィールドモデル

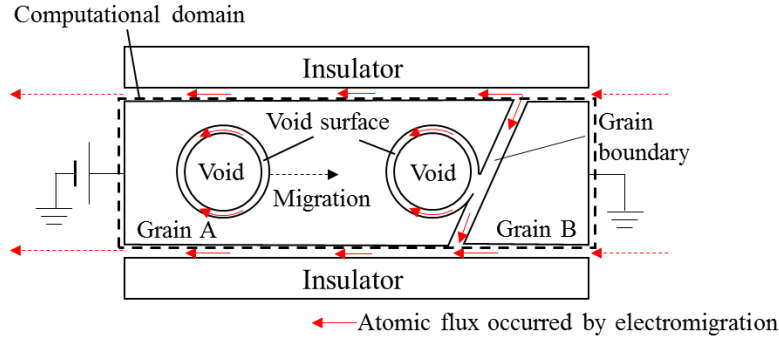
#### 2.2.1 エレクトロマイグレーションの基礎原理

微細な金属配線に大電流が印加されると、配線の温度は数百°C の高温となる。高温下においては、配線内の金属イオンは熱エネルギーを有し、移動することが可能となる。このように金属イオンが活性化した状態において、金属イオンに加わる力を **Fig. 2.3** に示す。配線内に電場が存在する場合、正の電荷を持つ金属イオンは、電場による静電気力  $F_E$  と、電子が衝突することで、エレクトロンウィンドフォースと呼ばれる力  $F_{wd}$  を受ける [138, 167]。  $F_E$  と  $F_{wd}$  は逆向きの力であるが、  $F_{wd}$  は  $F_E$  を無視できるほど大きい [168] ため、金属イオンは電子流と同じ向きに移動する。なお、金属原子は、配線内で金属イオンと容易に電子をやり取りできるため、配線内の金属イオンの移動は金属原子の移動と考えることができる。



**Fig. 2.3** Forces acting on metal ions in the electric field in which electromigration occurs.

EM が生じる配線内では、EM に誘起される原子の移動と原子の拡散の 2 種類の原子流束が、ボイドや粒界の進展に対し重要な役割を果たす。これらの原子流束は、原子の拡散係数が結晶粒内と比較して大きな、ボイド表面および粒界で支配的となる。そのため、結晶粒内での原子移動は無視できると仮定する [153, 169]。この仮定の下では、結晶粒内を移動するボイドの体積は一定と考えることができる [151, 152, 159-161]。 **Fig. 2.4** に、結晶粒内および粒界にそれぞれボイドが存在する場合の、EM 誘起の原子流束を示す。 **Fig. 2.4** の左側に示すように、ボイドが結晶粒内に存在すると、原子はボイド表面に沿って移動するため、ボイドは体積一定を保ちつつ移動する。一方、 **Fig. 2.4** の右側に示すように、ボイドが粒界と接触すると、原子は粒界に沿って移動し、ボイドに原子が流入または流出する。その結果、ボイドは粒界と接触している場合に、EM によって体積が変化する。また、原子の拡散による原子流束は、金属原子が拡散ポテンシャルの高い領域から低い領域に移動することで生じる。したがって、ボイドと粒界が接触した場合には、原子拡散の流束によってもボイドの体積は変化する。加えて、結晶粒内を移動するボイドの表面での原子拡散は、ボイドの形状変化に強く作用する [151, 159]。



**Fig. 2.4** Electromigration-induced atomic fluxes in the case that voids exist in a crystal grain and at a grain boundary, assuming that the atomic fluxes flow into and out of the computational domain from the exterior and that the void volume changes only at the grain boundary.

### 2.2.2 秩序変数と全自由エネルギー

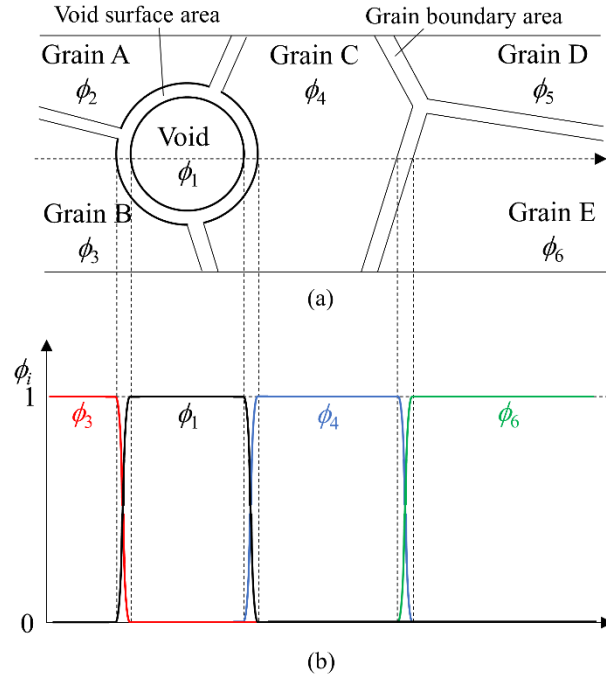
2.2.1 に示した原理に基づく EM によるボイド移動を解析するために、本研究では新しい MPF モデルを開発する。配線内のボイドと結晶粒の存在確率を、複数の PF 変数  $\phi_i$  ( $i = 1, 2, 3, \dots, N_\phi$ ) で定義する。 $\phi_i$  は、ボイドと結晶粒の界面や粒界において、0 から 1 まで滑らかに変化する。**Figure 2.5** に、ボイドを有する多結晶配線内での  $\phi_i$  の分布を示す。 $\phi_1$  はボイドの存在確率を表し、 $\phi_i$  ( $i \geq 2$ ) は結晶粒の存在確率を表す。複数のボイドが接触すると、1 つのボイドとして扱うことができる。そのため、 $\phi_1$  のみをボイドの存在確率として定義する。本研究の MPF モデルでは、**Fig. 2.5** に示すように、PF 変数  $\phi_i$  をすべて等価に扱うことで、EM によるボイドの移動、粒界でのボイドの体積変化、配線内の粒界移動を解析することが可能となる。配線内の任意の座標においては、 $\phi_i$  の和は次式を満たす必要がある [170-172].

$$\sum_{i=1}^{N_\phi} \phi_i = 1 \quad (2.14)$$

数値シミュレーション上では、式(2.14)は次式のように表現することができる。

$$\sum_{i=1}^{n_\phi} \phi_i = 1 \quad (2.15)$$

ここで、 $n_\phi$  は  $\phi_i > 0$  である PF 変数の数である。



**Fig. 2.5** (a) Definition of the phase-field variables,  $\phi_i$ , used in the multi-phase-field model and (b) the distributions of the phase-field variables along the dashed arrow shown in (a).

系の全自由エネルギーは, Gibbs の自由エネルギー汎関数として次式で定義する.

$$G = \int_V g dV = \int_V (g_{\text{doub}} + g_{\text{grad}}) dV \quad (2.16)$$

ここで,  $g_{\text{doub}}$  はダブルオブスタクルポテンシャル,  $g_{\text{grad}}$  は勾配エネルギー密度である. ダブルオブスタクルポテンシャルは, ボイドと結晶粒間や結晶粒同士の間のエネルギー障壁を表す.  $g_{\text{doub}}$  は次式で与えられる.

$$g_{\text{doub}} = \sum_{i=1}^{n_\phi} \sum_{j=i+1}^{n_\phi} \frac{2\gamma_{ij}}{\epsilon\pi} (2\phi_i\phi_j + I_{[0,1]}) \quad (2.17)$$

ここで,  $\gamma_{ij}$  は  $\phi_i$  と  $\phi_j$  が共に変化する界面での界面エネルギー,  $\epsilon$  は界面幅を決定するパラメータである [159, 160].  $\epsilon\pi/2$  が界面幅を表す.  $I_{[0,1]}$  は次式で表される.

$$I_{[0,1]} = \begin{cases} \infty & \phi_i < 0, 1 < \phi_i \\ 0 & 0 \leq \phi_i \leq 1 \end{cases} \quad (2.18)$$

式(2.18)に示すように,  $\phi_i < 0$  または  $\phi_i > 1$  でエネルギー密度が無限大になるダブルオブスタクルポテンシャルを用いることにより,  $\phi_i$  は 0 から 1 の範囲の値に定められる.

勾配エネルギー密度  $g_{\text{grad}}$  は, ボイドと結晶粒, または 2 つの結晶粒の間に界面が存在することによる過剰な自由エネルギーに相当する.  $g_{\text{grad}}$  は次式で表される.



$$g_{\text{grad}} = \sum_{i=1}^{n_\phi} \sum_{j=i+1}^{n_\phi} \left( -\frac{1}{2} a_{ij}^2 \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j \right) \quad (2.19)$$

ここで,  $a_{ij}$  は  $\phi_i$  と  $\phi_j$  が共に変化する界面での勾配エネルギー係数であり, 次式で表される.

$$a_{ij} = \sqrt{\frac{2\gamma_{ij}\epsilon}{\pi}} \quad (2.20)$$

### 2.2.3 時間発展方程式の導出

2.2.1 節で説明したように, 本研究では結晶粒内の原子流束は無視できるものと仮定するため, 結晶粒内を移動するボイドの体積は一定であるとする [151, 159-161]. したがって本 MPF モデルでは,  $\phi_i$  を保存量として扱う. 式(2.15)に示されるように,  $\phi_i$  は独立変数ではない. したがって,  $\phi_i$  を独立変数として扱うことが可能となるように, ラグランジュの未定乗数法を用いる [172]. ラグランジアン密度  $\Gamma$  は次式のように定義される.

$$\Gamma = G + \int_V \left\{ \lambda \left( \sum_{i=1}^n \phi_i - 1 \right) \right\} dV \quad (2.21)$$

ここで,  $\lambda$  はラグランジュの未定乗数である. 保存量である  $\phi_i$  の時間発展方程式は, Cahn-Hilliard 方程式 [164] から次式のように導出される.

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = \nabla \cdot \left\{ M_{ij}^\phi \nabla \left( \frac{\delta \Gamma}{\delta \phi_i} \right) \right\} \quad (2.22)$$

ここで,  $M_{ij}^\phi$  は  $\phi_i$  と  $\phi_j$  が共に変化する界面での PF モビリティである. 式(2.21)を式(2.22)に代入することで, 次式が得られる.

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = \nabla \cdot \left\{ M_{ij}^\phi \nabla \left( \frac{\delta G}{\delta \phi_i} + \lambda \right) \right\} \quad (2.23)$$

式(2.23)から  $\lambda$  を取り除くために, 次式で定義する変数  $\psi_{ij}$  を導入する.

$$\psi_{ij} = \phi_i - \phi_j \quad (2.24)$$

$\psi_{ij}$  はボイド表面または粒界を表す界面内のみで定義され,  $i \neq j$ ,  $\psi_{ij} = -\psi_{ji}$  である. 式(2.15)に式(2.55)を代入すると, 次式が得られる.

$$\sum_{i=1}^{n_\phi} \phi_i = \sum_{\substack{i=1 \\ (i \neq j)}}^{n_\phi} (\psi_{ij} + \phi_j) = \sum_{\substack{i=1 \\ (i \neq j)}}^{n_\phi} \psi_{ij} + n_\phi \phi_j = 1 \quad (2.25)$$

式(2.56)の  $i$  と  $j$  を入れ替えると次式に書き換えられる.

$$\sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} \psi_{ji} + n_\phi \phi_i = \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} (-\psi_{ij}) + n_\phi \phi_i = 1 \quad (2.26)$$

式(2.57)より, PF 変数 $\phi_i$ と変数 $\psi_{ij}$ の関係式として次式が得られる.

$$\phi_i = \frac{1}{n_\phi} \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} \psi_{ij} + 1 \quad (2.27)$$

また, 式(2.23)と式(2.24)から $\psi_{ij}$ の時間発展は次式で表すことが可能である.

$$\frac{\partial \psi_{ij}}{\partial t} = \frac{\partial \phi_i}{\partial t} - \frac{\partial \phi_j}{\partial t} = \nabla \cdot \left\{ M_{ij}^\phi \nabla \left( \frac{\delta G}{\delta \phi_i} - \frac{\delta G}{\delta \phi_j} \right) \right\} \quad (2.28)$$

式(2.28)より,  $\psi_{ij}$  の時間発展はラグランジュの未定乗数 $\lambda$ に依存しない. また, 式(2.27)より次式が導出される.

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = \frac{1}{n_\phi} \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} \left( \frac{\partial \psi_{ij}}{\partial t} \right) \quad (2.29)$$

式(2.29)に式(2.59)を代入すると次式が得られる.

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = \frac{2}{n_\phi} \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} \nabla \cdot \left\{ M_{ij}^\phi \nabla \left( \frac{\delta G}{\delta \phi_i} - \frac{\delta G}{\delta \phi_j} \right) \right\} \quad (2.30)$$

ここで, 右辺の分子の 2 は, 結晶粒内でのボイド移動を考える際に, つまり  $n_\phi = 2$  の場合に, 式(2.30)を 1 つの秩序変数のみを用いる PF モデルの時間発展方程式に帰着させるために導入する. 式(2.30)は次式のように表すことができる.

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -\frac{2}{n_\phi} \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} \nabla \cdot \mathbf{J}_{ij, \text{diff}} \quad (2.31)$$

ここで,  $\mathbf{J}_{ij, \text{diff}}$  は $\phi_i$ と $\phi_j$ が共に変化するボイド表面または粒界における原子拡散流束を表す. すなわち, 式(2.31)は, 結晶粒内のボイド体積の一定を仮定し, 原子の拡散のみを考慮した $\phi_i$ の時間発展方程式である.

EM によるボイド移動を解析するために, EM 誘起の原子流束を導入する.

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -\frac{2}{n_\phi} \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^n \nabla \cdot (\mathbf{J}_{ij, \text{diff}} + \mathbf{J}_{ij, \text{EM}}) \quad (2.32)$$

ここで,  $\mathbf{J}_{ij, \text{EM}}$  がボイド表面および粒界における EM 誘起の原子流束である.  $\mathbf{J}_{ij, \text{diff}}$  のみを考慮する場合は, 見かけ上のボイドの大きさは変化しても,  $\phi_i$  の積分値は一定である. 一方で, 本研究の MPF モデルは, 式(2.31)で示される Cahn-Hilliard 型の方程式に  $\mathbf{J}_{ij, \text{EM}}$  EM 誘起を加えることで, 粒界を通じたボイドへの原子の流入とボイドからの原子の流出をモデル化する. そのため, ボイドが粒界と接触している場合は,  $\phi_i$  の積分値は一定を保たないボイドの成長や収縮が生じる.  $\mathbf{J}_{ij, \text{EM}}$  は次式で表される [173, 174].

$$\mathbf{J}_{ij,\text{EM}} = M_{ij}^\phi |e| Z_{ij}^* \nabla_t V \quad (2.33)$$

ここで,  $e$  は原子素量,  $Z_{ij}^*$  は有効電荷数,  $V$  は電位である.  $\nabla_t$  は界面の接線方向の勾配を計算する演算子である. 全原子流束  $\mathbf{J}_{ij}$  は次式で表される.

$$\mathbf{J}_{ij} = \mathbf{J}_{ij,\text{diff}} + \mathbf{J}_{ij,\text{EM}} = -M_{ij}^\phi \left\{ \nabla(\mu_i - \mu_j) - |e| Z_{ij}^* \nabla_t V \right\} \quad (2.34)$$

ここで,  $\mu_i$  は拡散ポテンシャルであり, 次式で表される.

$$\mu_i = \Omega \frac{\delta G}{\delta \phi_i} \quad (2.35)$$

ここで,  $\Omega$  は原子体積である.  $\phi_i$  の時間発展方程式は, 式(2.34)を式(2.32)に代入することで, 次式に示すように表される.

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = \frac{2}{n_\phi} \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} \nabla \cdot \left[ M_{ij}^\phi \left\{ \nabla(\mu_i - \mu_j) - |e| Z_{ij}^* \nabla_t V \right\} \right]. \quad (2.36)$$

拡散ポテンシャル  $\mu_i$  は, 全自由エネルギーの汎関数微分  $\delta G / \delta \phi_i$  から導出できる.  $\delta G / \delta \phi_i$  は, 式(2.17)と式(2.19)を式(2.16)に代入し, 次式で表される.

$$\begin{aligned} \frac{\delta G}{\delta \phi_i} &= \frac{\partial g}{\partial \phi_i} - \nabla \cdot \frac{\partial g}{\partial \nabla \phi_i} \\ &= \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} \left( \frac{2\gamma_{ij}}{\epsilon \pi} \cdot 2\phi_j + \frac{1}{2} a_{ij}^2 \nabla^2 \phi_j \right) \\ &= \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^{n_\phi} \frac{2\gamma_{ij}}{\epsilon \pi} \left( 2\phi_j + \frac{1}{2} \epsilon^2 \nabla^2 \phi_j \right) \end{aligned} \quad (2.37)$$

式(2.37)を式(2.35)に代入し,  $j$  を  $k$  に置き換えることで, 拡散ポテンシャルは次式で表される.

$$\mu_i = \Omega \sum_{\substack{k=1 \\ (k \neq i)}}^{n_\phi} \frac{2\gamma_{ik}}{\epsilon \pi} \left( 2\phi_k + \frac{1}{2} \epsilon^2 \nabla^2 \phi_k \right) \quad (2.38)$$

また, 次式が得られる.

$$\begin{aligned} \mu_i - \mu_j &= \Omega \sum_{\substack{k=1 \\ (k \neq i, j)}}^{n_\phi} \left[ \frac{2\gamma_{ik}}{\epsilon \pi} \left( 2\phi_k + \frac{1}{2} \epsilon^2 \nabla^2 \phi_k \right) - \frac{2\gamma_{jk}}{\epsilon \pi} \left( 2\phi_k + \frac{1}{2} \epsilon^2 \nabla^2 \phi_k \right) \right] \\ &= \Omega \sum_{\substack{k=1 \\ (k \neq i, j)}}^{n_\phi} \left[ \frac{2(\gamma_{ik} - \gamma_{jk})}{\epsilon \pi} \left( 2\phi_k + \frac{1}{2} \epsilon^2 \nabla^2 \phi_k \right) \right] \end{aligned} \quad (2.39)$$

界面の接線方向の勾配を計算する演算子  $\nabla_t$  は以下のように説明できる. **Figure 2.6** に, 任意の界面が存在する電場内のモード図を示す.  $\nabla_t V$  は,  $\nabla V$  の界面への正射影ベクトルである. ここで, 界面の法線ベクトル  $\mathbf{X}$  と  $\nabla_t V$ ,  $\nabla V$  の関係を以下のように定義する.

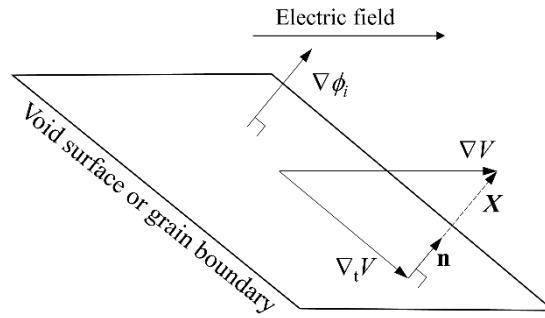
$$\nabla_t V = \nabla V + \mathbf{X} \quad (2.40)$$

ここで、界面の単位法線ベクトルを  $\mathbf{n}$  とすると、 $\mathbf{X} = X\mathbf{n}$  である。 $X$  は  $\mathbf{X}$  の大きさであり、 $\nabla V$  と  $\mathbf{n}$  の内積により計算できる。したがって、式(2.40)は次式に書き換えられる。

$$\begin{aligned} \nabla_t V &= \nabla V - \mathbf{X} \\ &= \nabla V - X\mathbf{n} \\ &= \nabla V - (\nabla V \cdot \mathbf{n})\mathbf{n} \end{aligned} \quad (2.41)$$

単位法線ベクトル  $\mathbf{n}$  は PF 変数  $\phi_i$  の勾配から次式で計算できる。

$$\mathbf{n} = \frac{\nabla \phi_i}{|\nabla \phi_i|} \quad (2.42)$$



**Fig. 2.6** Schematic diagram of the void surface of the grain boundary in an electric field. The orthographic projection vector of  $\nabla V$  onto the interface  $\nabla_t V$  is given by the normal vector of the interface,  $X$ , and the unit normal vector of the interface,  $\mathbf{n}$ , where  $\mathbf{n}$  equals the gradient of the phase-field variables,  $\phi_i$ .

式(2.56)を式(2.41)に代入することで、 $\nabla_t V$ は次式で表される。

$$\nabla_t V = \nabla V - (\nabla V \cdot \nabla \phi_i) \frac{\nabla \phi_i}{|\nabla \phi_i|^2} \quad (2.43)$$

以上より、 $\phi_i$ の時間発展方程式が次式のように得られる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi_i}{\partial t} &= \frac{2}{n_\phi} \sum_{j=1}^{n_\phi} \nabla \cdot \left[ M_{ij}^\phi \left\{ \nabla \left( \Omega \sum_{k=1}^{n_\phi} \left\{ \frac{2(\gamma_{ik} - \gamma_{jk})}{\epsilon \pi} \left( 2\phi_k + \frac{1}{2} \epsilon^2 \nabla^2 \phi_k \right) \right\} \right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - |e| Z_{ij}^* \left( \nabla V - (\nabla V \cdot \nabla \phi_i) \frac{\nabla \phi_i}{|\nabla \phi_i|^2} \right) \right\} \right] \end{aligned} \quad (2.44)$$

PF モビリティ  $M_{ij}^\phi$ 、界面エネルギー  $\gamma_{ij}$ 、有効原子価  $Z_{ij}^*$  は界面でのみ定義されるため、式(2.44)は  $i \neq j, i \neq k, j \neq k$  の場合でのみ解くことができる。本研究では、数値シミュレーションで式(2.44)を解くために、 $M_{ij}^\phi, \gamma_{ij}, Z_{ij}^*$  は  $i = j, i = k, j = k$  の場合に 0 と定義する。

ボイドの形状変化は、界面モビリティ、界面エネルギー、原子拡散係数などの材料パラメ

ータの、配線内の結晶粒の結晶方位に依存した異方性に影響される [150, 154]. これらの異方性を MPF モデルに導入することは可能である. しかしながら、これらの異方性が考慮されていない先行研究のシミュレーション結果 [175] を比較対象として MPF モデルの妥当性を評価するため、本研究では結晶方位に依存した異方性は考慮せず、界面の種類に依存した材料パラメータの異方性のみを考慮する.

PF モビリティ  $M_{ij}^\phi$  は次式で定義する.

$$M_{ij}^\phi = \begin{bmatrix} 0 & M^\phi & M^\phi & \cdots & M^\phi_s \\ M^\phi & 0 & M^\phi & \cdots & M^\phi \\ M^\phi & M^\phi & 0 & & \vdots \\ \vdots & \vdots & & \ddots & M^\phi \\ M^\phi & M^\phi & \cdots & M^\phi & 0 \end{bmatrix} \quad (2.45)$$

ここで、 $M^\phi$  は次式で定義する界面モビリティである.

$$M^\phi = \frac{2A}{\epsilon\pi} \cdot \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \{ D_{ij} \cdot 16\phi_i^2 \phi_j^2 \} \quad (2.46)$$

ここで、 $A$  は界面が有限の幅を持つために導入するフィッティングパラメータである.  $M^\phi$  の体積積分値が、急峻界面モデルの界面で拡散係数が  $0$  から  $D_{ij}$  にステップ関数上に変化する場合はモビリティの体積積分値と一致するように  $A$  を決定する.  $2/\epsilon\pi$  は界面が有限の幅を持つために導入される項である. また、原子の移動はボイド表面および粒界でのみ発生すると考え、 $\phi_i = 0$  または  $\phi_j = 0$  で  $0$  となり、 $\phi_i = \phi_j = 0.5$  で  $1$  となる関数  $16\phi_i^2 \phi_j^2$  を導入する.  $D_{ij}$  は界面領域における原子の拡散係数であり、次式で定義する.

$$D_{ij} = \begin{bmatrix} 0 & D_s & D_s & \cdots & D_s \\ D_s & 0 & D_{gb} & \cdots & D_{gb} \\ D_s & D_{gb} & 0 & \ddots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \ddots & D_{gb} \\ D_s & D_{gb} & \cdots & D_{gb} & 0 \end{bmatrix} \quad (2.47)$$

ここで、 $D_s$  と  $D_{gb}$  は、それぞれボイド表面と粒界の拡散係数である.  $D_s$  および  $D_{gb}$  は次式で定義する [176].

$$D_s = \frac{D_s^0 \delta_s}{k_B T} \exp\left(-\frac{Q_s}{k_B T}\right) \quad (2.48)$$

$$D_{gb} = \frac{D_{gb}^0 \delta_{gb}}{k_B T} \exp\left(-\frac{Q_{gb}}{k_B T}\right) \quad (2.49)$$

ここで、 $D_s^0 \exp(-Q_s/k_B T)$  と  $D_{gb}^0 \exp(-Q_{gb}/k_B T)$  は、ボイド表面および粒界の、アレニウス則に基づく原子の拡散係数である.  $D_s^0$  と  $D_{gb}^0$  は原子の拡散係数の振動数項、 $Q_s$  と  $Q_{gb}$  はボイド表面および粒界における、原子拡散の活性化エネルギーである.  $\delta_s$  および  $\delta_{gb}$  はボイド表面および粒界の拡散層厚さであり、界面において金属原子の移動が生じる領域の幅を意味する.

界面エネルギー $\gamma_{ij}$ は次式で定義する.

$$\gamma_{ij} = \begin{bmatrix} 0 & \gamma_s & \gamma_s & \cdots & \gamma_s \\ \gamma_s & 0 & \gamma_{gb} & \cdots & \gamma_{gb} \\ \gamma_s & \gamma_{gb} & 0 & & \vdots \\ \vdots & \vdots & & \ddots & \gamma_{gb} \\ \gamma_s & \gamma_{gb} & \cdots & \gamma_{gb} & 0 \end{bmatrix} \quad (2.50)$$

ここで,  $\gamma_s$  と  $\gamma_{gb}$  はそれぞれ, ボイドの表面エネルギーと粒界エネルギーである. 有効電荷数 $Z_{ij}^*$ は次式で定義する.

$$Z_{ij}^* = \begin{bmatrix} 0 & -Z_s^* & -Z_s^* & \cdots & -Z_s^* \\ Z_s^* & 0 & Z_{gb}^* & \cdots & Z_{gb}^* \\ Z_s^* & Z_{gb}^* & \ddots & & \vdots \\ \vdots & \vdots & & \ddots & Z_{gb}^* \\ Z_s^* & Z_{gb}^* & \cdots & Z_{gb}^* & 0 \end{bmatrix} \quad (2.51)$$

ここで,  $Z_s^*$  と  $Z_{gb}^*$  はそれぞれ, ボイド表面および粒界の有効電荷数である. 式(2.51)の第 1 行はボイド移動の駆動力, 第 2 行以降は原子の移動の駆動力となるため, 符号が反転する. なお, 本研究の MPF モデルは,  $|Z_{gb}^*| > 0$  とすることでボイドの粒界での体積変化が生じ,  $Z_{gb}^* = 0$  とすると体積変化が無視される.

$\phi_i$  の時間発展方程式である式(2.44)の右辺第 2 項の, EM による原子およびボイドの駆動力項には, 電位勾配 $\nabla V$ を含む. したがって, 配線内の電位分布は次式の Poisson 方程式を解くことにより求める [159, 160].

$$\nabla \cdot [\zeta(\phi_i) \nabla V] = 0 \quad (2.52)$$

ここで,  $\zeta(\phi_i)$  は導電率を表す関数であり, 粒界の導電率が粒内の導電率と等しいと仮定することで,  $\phi_i$  の関数として定義する.  $\zeta(\phi_i)$  は次式で定義する.

$$\zeta(\phi_i) = (\zeta_{\text{void}}^* - \zeta_{\text{bulk}}^*) q(\phi_i) + \zeta_{\text{bulk}}^* \quad (2.53)$$

ここで,  $\zeta_{\text{bulk}}^*$  と  $\zeta_{\text{void}}^*$  はそれぞれ, バルクとボイド内部の導電率である.  $q(\phi_i)$  は内挿関数であり,  $q(\phi_i) = \phi_i^3(10 - 15\phi_i + 6\phi_i^2)$  とする.

数値シミュレーションにおいて, 式(2.44)で表される  $\phi_i$  の時間発展方程式は, 有限差分法により離散化することで計算する. 時間増分については 1 次精度のオイラー差分法を, 空間微分に対しては 2 次精度の中央差分法を用いて離散化する. また, 配線内の電位分布は, 式(2.53)に示す Poisson 方程式を, SOR 法 [177] を用いた収束計算を行うことで計算する.

## 2.3 4次元変分法に基づくデータ同化

### 2.3.1 状態ベクトルと観測ベクトル

ベイズ推論に基づくデータ同化では、データ同化の対象とする系の状態とその時間発展、および状態と対応する観測データを表現するために、状態ベクトル  $\mathbf{x}_t$  と観測ベクトル  $\mathbf{y}_t$  を定義する。

状態ベクトル  $\mathbf{x}_t$  は、任意の時刻  $t (t = 0, 1, \dots, t_{end})$  での、数値シミュレーションで使用されるすべての状態変数をまとめたベクトルとして定義される。また、観測ベクトル  $\mathbf{y}_t$  は、時刻  $t$  における観測データによって構成されるベクトルとして定義される。データ同化によって未知のパラメータを推定する場合、 $\mathbf{x}_t$  は推定するパラメータも含む。このとき、 $\mathbf{x}_t$  は拡大状態ベクトルと呼ばれる。 $\mathbf{x}_t$  には、連続空間の現象を離散化して計算することで生じる数値計算誤差や、数値シミュレーションモデルの不完全さ、モデルパラメータの不確かさなどの、数値シミュレーションに由来する誤差が含まれる。また  $\mathbf{y}_t$  も、実験誤差などの観測に伴う誤差を含む。これらの誤差は独立でガウス分布に従う確率変数である [100] と仮定すると、任意の時刻  $t$  における  $\mathbf{x}_t$  と  $\mathbf{y}_t$  は、ガウス分布型の確率密度関数 (PDF) である。

### 2.3.2 4次元変分法

4DVar [99, 100] では、第一推定の初期状態ベクトル  $\mathbf{x}_0^b$  を定義する。 $\mathbf{x}_0^b$  は背景状態ベクトルとも呼ばれる。ある初期状態ベクトル  $\mathbf{x}_0$  が与えられたとき、 $\mathbf{x}_0^b$  が得られる確率密度を表す条件付き PDF は次式で表される。

$$p(\mathbf{x}_0^b | \mathbf{x}_0) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^l |\mathbf{B}|}} \exp \left[ -\frac{1}{2} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b)^T \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) \right] \quad (2.54)$$

ここで、 $l$  は状態ベクトルの次元数である。 $\mathbf{B}$  は  $\mathbf{x}_0^b$  に含まれる誤差を表す  $l \times l$  の共分散行列であり、背景誤差共分散行列と呼ばれる。上付き文字 T は転置を意味する。また、時刻  $t$  において、 $\mathbf{x}_t$  が与えられたときに  $\mathbf{y}_t$  が得られる確率密度を表す条件付き PDF は、次式で表される。

$$p(\mathbf{y}_t | \mathbf{x}_t) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^m |\mathbf{R}_t|}} \exp \left[ -\frac{1}{2} (H_t(\mathbf{x}_t) - \mathbf{y}_t)^T \mathbf{R}_t^{-1} (H_t(\mathbf{x}_t) - \mathbf{y}_t) \right] \quad (2.55)$$

ここで、 $m$  は観測ベクトルの次元数である。 $H_t$  は観測演算子であり、 $\mathbf{x}_t$  から  $\mathbf{y}_t$  に対応する成分を抽出する働きを持つ。 $\mathbf{R}_t$  は観測誤差共分散行列と呼ばれる  $m \times m$  の共分散行列であり、 $\mathbf{y}_t$  に含まれる誤差を表す。本研究では、 $\mathbf{x}_t$  と  $\mathbf{y}_t$  に含まれる誤差は平均 0 のガウス分布に従い、誤差同士の相関は 0 と仮定することで、 $\mathbf{B}$  と  $\mathbf{R}_t$  を対角行列として扱う。特に  $\mathbf{y}_t$  に含まれる誤差の標準偏差は全時刻で一様に  $\sigma$  であると仮定することで、 $\mathbf{R}_t$  は  $\mathbf{R}_t = \sigma^2 \mathbf{I}_R$  として定義する。ここで  $\mathbf{I}_R$  は  $m \times m$  の単位行列である。

$\mathbf{x}_t$  の時間発展は PF シミュレーションによって計算されるため、次式で表す。

$$\mathbf{x}_t = M(\mathbf{x}_{t-1}) = M^t(\mathbf{x}_0) \quad (2.56)$$

ここで、 $M$ はモデル演算子であり、数値シミュレーションで使用する PF モデルに相当する。 $M^t$ は時刻  $t$  までの PF シミュレーションを実施することに等しい。式(2.56)より、観測演算子  $H_t$  は新たな観測演算子  $\hat{H}_t$  を定義することで次式のように表現できる。

$$H_t(\mathbf{x}_t) = H_t(M^t(\mathbf{x}_0)) = \hat{H}_t(\mathbf{x}_0) \quad (2.57)$$

式(2.57)を式(2.55)に代入することで、条件付き PDF である  $p(\mathbf{y}_t|\mathbf{x}_0)$  は次式で表される。

$$p(\mathbf{y}_t | \mathbf{x}_0) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^m |\mathbf{R}_t|}} \exp \left[ -\frac{1}{2} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - \mathbf{y}_t)^\top \mathbf{R}_t^{-1} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - \mathbf{y}_t) \right] \quad (2.58)$$

$\mathbf{x}_0^b$  と  $\mathbf{y}_t$  ( $t = 0, 1, \dots, t_{\text{end}}$ ) が独立であると仮定すると、 $\mathbf{x}_0^b$  と  $\mathbf{y}_t$  が同時に得られる条件付き PDF は、それぞれの条件付き PDF である  $p(\mathbf{x}_0^b|\mathbf{x}_0)$  と  $p(\mathbf{y}_t|\mathbf{x}_0)$  の積で表される。この条件付き PDF は尤度関数と呼ばれ、次式で与えられる [178]。

$$\begin{aligned} L(\mathbf{x}_0 | \mathbf{x}_0^b, \mathbf{y}_0, \dots, \mathbf{y}_{t_{\text{end}}}) &= p(\mathbf{x}_0^b | \mathbf{x}_0) \prod_{t=0}^{t_{\text{end}}} p(\mathbf{y}_t | \mathbf{x}_0) \\ &= C \exp \left[ -\left\{ \frac{1}{2} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b)^\top \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \frac{1}{2} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - \mathbf{y}_t)^\top \mathbf{R}_t^{-1} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - \mathbf{y}_t) \right\} \right] \end{aligned} \quad (2.59)$$

ここで、 $C$  は式(2.54)と式(2.58)の非指数部の積を表す定数である。推定される最適な初期状態ベクトル  $\mathbf{x}_0^a$  は、式(2.59)で表される尤度関数を最大化する [178]。尤度関数を最大化することは、式(2.59)の指数部を最小化することと等しい。したがって、評価関数を次式のように定義する。

$$J(\mathbf{x}_0) = \frac{1}{2} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b)^\top \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \frac{1}{2} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - \mathbf{y}_t)^\top \mathbf{R}_t^{-1} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - \mathbf{y}_t). \quad (2.60)$$

$\mathbf{x}_0^a$  は、評価関数の勾配  $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  ( $= \partial J(\mathbf{x}_0) / \partial \mathbf{x}_0$ ) が 0 となる  $\mathbf{x}_0$  を探索することで見つけることができる。 $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  は次式で与えられる。

$$\nabla J(\mathbf{x}_0) = \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \hat{\mathbf{H}}_t^\top \mathbf{R}_t^{-1} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - \mathbf{y}_t) \quad (2.61)$$

ここで、 $\hat{\mathbf{H}}_t$  は  $\hat{H}_t$  の接線形演算子であり、次式で表される。

$$\hat{\mathbf{H}}_t = \mathbf{H}_t \mathbf{M}_{t-1} \mathbf{M}_{t-2} \dots \mathbf{M}_0 \quad (2.62)$$

ここで、 $\mathbf{H}_t$  と  $\mathbf{M}_t$  はそれぞれ  $H_t$  と  $M$  の接線形演算子である。 $\mathbf{H}_t$  は次式で定義される。

$$\mathbf{H}_t = \frac{\partial H_t(\mathbf{x}_t)}{\partial \mathbf{x}_t} \quad (2.63)$$



また,  $\mathbf{M}_t$  は次式で定義される.

$$\mathbf{M}_t = \frac{\partial M(\mathbf{x}_t)}{\partial \mathbf{x}_t} \quad (2.64)$$

式(2.62)を式(2.61)に代入することで,  $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  は次式で表される.

$$\nabla J(\mathbf{x}_0) = \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} (\mathbf{H}_t \mathbf{M}_{t-1} \mathbf{M}_{t-2} \dots \mathbf{M}_0)^T \mathbf{R}_t^{-1} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - y_t) \quad (2.65)$$

式(2.65)に含まれる  $\mathbf{H}_t^T$  と  $\mathbf{M}_t^T$  はアジョイント演算子と呼ばれる. 評価関数の勾配  $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  を計算するためには, アジョイントモデルの計算, すなわち  $\mathbf{M}_t$  の計算が必要である. しかしながら, PF モデルの時間発展方程式は多くの場合で高次かつ非線形の偏微分方程式であるため,  $\mathbf{M}_t$  を解析的に導出するには高度な数学的知識や技術を必要とする. この問題を回避するために, 次節で説明するような,  $\mathbf{M}_t$  の計算が不要なアンサンブル 4 次元変分法 (En4DVar) が提案されている.

### 2.3.3 アンサンブル 4 次元変分法

En4DVar [105, 106] は,  $\mathbf{M}_t$  を明示的に計算することなく評価関数の勾配  $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  を計算するために, PDF をアンサンブル近似によって表現する. アンサンブル近似のために, 初期条件やパラメータの異なる  $N_p$  個の状態ベクトル  $\mathbf{x}_t^{(s)}$  ( $s = 1, 2, \dots, N_e$ ) を,  $N_e$  回の PF シミュレーションを実行することで生成する. 以降,  $\mathbf{x}_t^{(s)}$  をアンサンブルメンバー,  $N_e$  をアンサンブルサイズと呼ぶ.

$\mathbf{M}_t$  の計算を回避するために, まず行列  $\mathbf{U}$  を次式に示すように定義する.

$$\mathbf{B} = \mathbf{U} \mathbf{U}^T \quad (2.66)$$

式(2.66)を式(2.60)に代入することで, 次式が得られる.

$$J(\mathbf{x}_0) = \frac{1}{2} \left( \mathbf{U}^{-1}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) \right)^T \mathbf{U}^{-1}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \frac{1}{2} \left( \hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - y_t \right)^T \mathbf{R}_t^{-1} (\hat{H}_t(\mathbf{x}_0) - y_t) \quad (2.67)$$

式(2.67)は次式に書き換えられる.

$$J(\mathbf{W}) = \frac{1}{2} \mathbf{W}^T \mathbf{W} + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \frac{1}{2} \left( H_t \left( M^t(\mathbf{x}_0^b + \mathbf{U} \mathbf{W}) \right) - y_t \right)^T \mathbf{R}_t^{-1} \left( H_t \left( M^t(\mathbf{x}_0^b + \mathbf{U} \mathbf{W}) \right) - y_t \right) \quad (2.68)$$

ここで,  $\mathbf{W}$  は次式で定義されるベクトルである.

$$\begin{aligned} \mathbf{W} &= \mathbf{U}^{-1}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) \\ \Leftrightarrow \mathbf{x}_0 &= \mathbf{x}_0^b + \mathbf{U} \mathbf{W} \end{aligned} \quad (2.69)$$

En4DVar では,  $\mathbf{U}$  をアンサンブル摂動行列  $\mathbf{X}_0^f$  で置き換える.  $\mathbf{X}_0^f$  は, 次式で定義する.

$$\mathbf{X}_0^f = \frac{1}{\sqrt{N_e - 1}} \left( \mathbf{x}_0^{f(1)} - \mathbf{x}_0^f, \mathbf{x}_0^{f(2)} - \mathbf{x}_0^f, \dots, \mathbf{x}_0^{f(N_e)} - \mathbf{x}_0^f \right) \quad (2.70)$$

ここで,  $\mathbf{x}_0^f$  はアンサンブル平均の差であり, 次式で与えられる.

$$\mathbf{x}_0^f = \frac{1}{N_e} \sum_{s=1}^{N_e} \mathbf{x}_0^{f(s)} \quad (2.71)$$

$\mathbf{U}$  を  $\mathbf{X}_0^f$  で置き換えることで,  $\mathbf{B}$  は次式に示すように近似される.

$$\mathbf{B} \approx \mathbf{X}_0^f \left( \mathbf{X}_0^f \right)^T \quad (2.72)$$

また,  $\mathbf{B}$  を式(2.72)のように近似することで, 初期状態ベクトル  $\mathbf{x}_0$  は次式で表すことができる.

$$\mathbf{x}_0 = \mathbf{x}_0^f + \mathbf{X}_0^f \mathbf{w} \quad (2.73)$$

ここで,  $\mathbf{w}$  は  $N_e$  次元の制御ベクトルである.  $\mathbf{x}_0^f$  は  $\mathbf{w}$  によって調節されることで,  $\mathbf{x}_0$  と  $\mathbf{x}_0^f$  の差を表現する.  $\mathbf{w}$  が最適に決定されることで, 式(2.73)から  $\mathbf{x}_0^f$  が得られる. 式(2.73)を用いることで, 評価関数は  $\mathbf{w}$  の関数として次式で与えられる [105, 106].

$$J(\mathbf{w}) = \frac{1}{2} \mathbf{w}^T \mathbf{w} + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \frac{1}{2} \left[ H_t \left( M^t \left( \mathbf{x}_0^f + \mathbf{X}_0^f \mathbf{w} \right) \right) - \mathbf{y}_t \right]^T \mathbf{R}_t^{-1} \left[ H_t \left( M^t \left( \mathbf{x}_0^f + \mathbf{X}_0^f \mathbf{w} \right) \right) - \mathbf{y}_t \right] \quad (2.74)$$

式(2.74)から, 評価関数の勾配  $\nabla J(\mathbf{w})$  が次式に示すように得られる.

$$\nabla J(\mathbf{w}) = \mathbf{w} + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \left( \mathbf{H}_t \mathbf{M}_t \mathbf{X}_0^f \right)^T \mathbf{R}_t^{-1} \left[ H_t \left( M^t \left( \mathbf{x}_0^f + \mathbf{X}_0^f \mathbf{w} \right) \right) - \mathbf{y}_t \right] \quad (2.75)$$

ここで,  $\mathbf{H}_t \mathbf{M}_t \mathbf{X}_0^f$  は次式で計算できる.

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_t \mathbf{M}_t \mathbf{X}_0^f = & \frac{1}{\sqrt{N_e - 1}} \left( H_t \left( M^t \left( \mathbf{x}_0^{f(1)} \right) \right) - H_t \left( M^t \left( \mathbf{x}_0^f \right) \right), \dots \right. \\ & \left. \dots, H_t \left( M^t \left( \mathbf{x}_0^{f(N_e)} \right) \right) - H_t \left( M^t \left( \mathbf{x}_0^f \right) \right) \right) \end{aligned} \quad (2.76)$$

式(2.75)および式(2.76)で示されているように, En4DVar は接線形演算子  $\mathbf{M}_t$  を解析的に計算せずとも評価関数の勾配  $\nabla J(\mathbf{w})$  を計算することができる. したがって, En4DVar は PF モデルへの実装が 4DVar と比較すると容易である. さらに, PF モデルに変更を加えた場合でも, ソースコードの大幅な変更を必要としないため, ロバストである.

**Fig. 2.7** に, En4DVar を使用して  $\mathbf{x}_0^f$  を推定する計算のフローチャートを示す.

Step 1: 異なる初期条件とパラメータを使用した  $N_e$  回の PF シミュレーションを実施することで,  $\mathbf{x}_t^{f(s)}$  ( $t = 0 - t_{\text{end}}$ ) を生成する.

Step 2: 式(2.70)と式(2.71)から,  $\mathbf{x}_0^f$  と  $\mathbf{X}_0^f$  を計算する.

Step 3:  $\mathbf{w}_k$  ( $k = 0$ , ここで  $k$  は  $J(\mathbf{w}_k)$  を最小化するための反復計算の回数) を設定する. 本研究では,  $\mathbf{w}_0$  の要素はすべて 1 とする.

Step 4: 式(2.73)から,  $\mathbf{x}_0$  を計算する.

Step 5: Step 4 で計算された  $\mathbf{x}_0$  を初期条件とした PF シミュレーションを実施する.

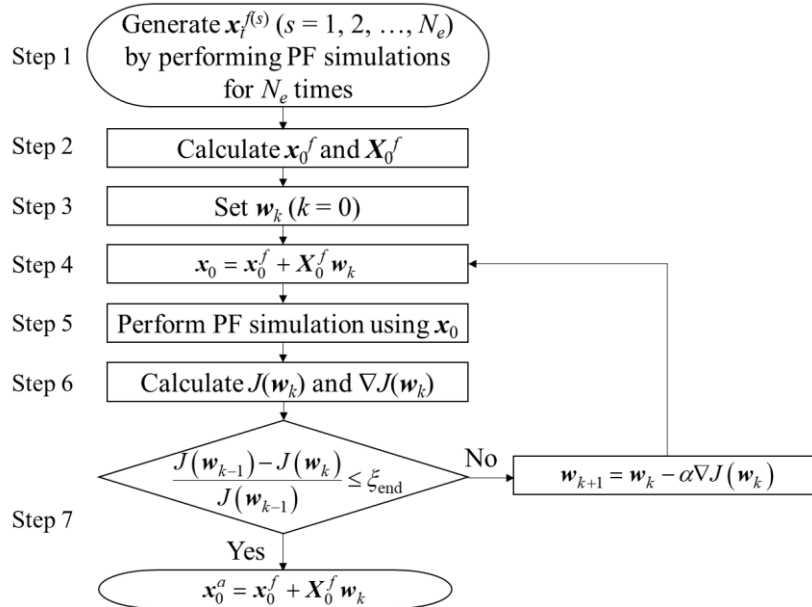
Step 6: 式(2.74), 式(2.75), 式(2.76)を用いて,  $J(\mathbf{w}_k)$  と  $\nabla J(\mathbf{w}_k)$  を計算する.

Step 7: 終了条件  $\chi \leq \xi_{\text{end}}$  を満たすまで  $J(\mathbf{w}_k)$  の最小化を行う. ここで,  $\xi_{\text{end}}$  は収束条件であり,  $\chi$  は次式で定義する,  $J(\mathbf{w}_{k-1})$  から  $J(\mathbf{w}_k)$  への値の変化率である.

$$\chi = \frac{J(\mathbf{w}_{k-1}) - J(\mathbf{w}_k)}{J(\mathbf{w}_{k-1})} \quad (2.77)$$

$J(\mathbf{w}_k)$  は,  $\mathbf{w}_{k+1} = \mathbf{w}_k - \alpha \nabla J(\mathbf{w}_k)$  によって  $\mathbf{w}_k$  を更新することで最小化する. ここで,  $\alpha$  は  $\mathbf{w}_k$  から  $\mathbf{w}_{k+1}$  への更新量を制御するパラメータである.

本研究では, Step 4 から 7 までを反復することで, 最適な初期状態ベクトル  $\mathbf{x}_0^a$  を求める.

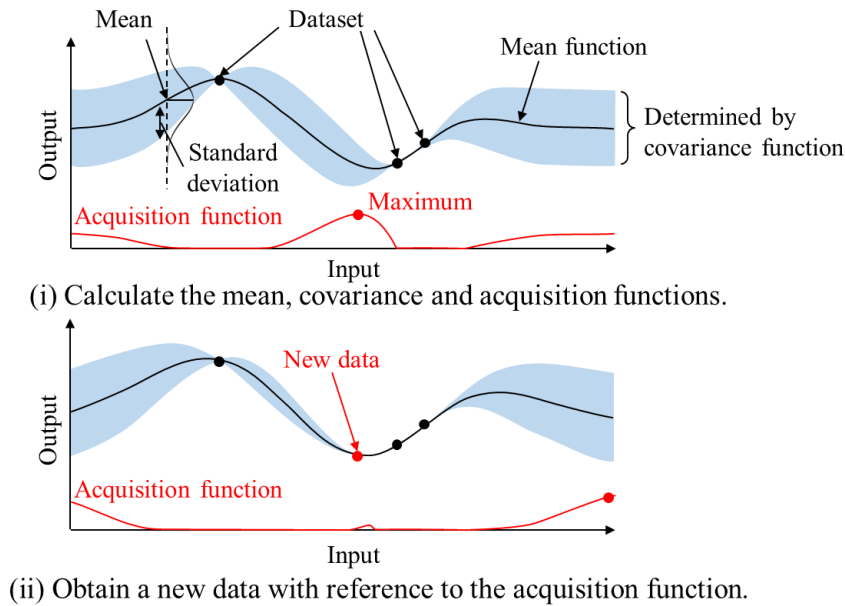


**Fig. 2.7** Flowchart for estimating the optimal state vector,  $\mathbf{x}_0^a$ , using En4DVar data assimilation.

## 2.4 ベイズ最適化

### 2.4.1 ガウス過程回帰

ベイズ最適化 (BO) は、最適化を行う目的関数  $f_{\text{obj}}$  への入力  $\mathbf{x}_{\text{BO}}$  ( $\mathbf{x}_{\text{BO}}$  は最適化される  $d$  個のパラメータをまとめたベクトル) と、その返り値である出力  $y_{\text{BO}} = f_{\text{obj}}(\mathbf{x}_{\text{BO}})$  の関係を、ガウス過程回帰 (GPR) [179] を用いて回帰することで、目的関数の最大化や最小化が可能な反復法である。GPR は、目的関数への任意の入力に対する出力が、ガウス分布として与えられる関数として、目的関数をモデル化する手法である。一般的なガウス分布が平均と分散で定義されるように、GPR でモデル化される目的関数も平均関数と共分散関数によって定義される [179]。Figure 2.8 に、1 次元の未知関数を最小化する例題で、GPR から得られる平均関数と共分散関数の模式図を示す。BO では、まず入力と出力の組み合わせであるデータセットを用いて、GPR により平均関数と共分散関数を計算する。そして、任意の入力に対して得られる平均と標準偏差から、獲得関数を計算する (Fig. 2.8 (i))。獲得関数についての詳細は、2.4.2 節で述べる。そして、獲得関数が最大となる入力に対応する出力を得る (Fig. 2.8 (ii))。 (i) と (ii) を反復して行うことで、BO は未知関数の勾配を計算することなく、最適解を見つけることができる。



**Fig. 2.8** Distribution of the mean function and its standard deviation obtained from an optimization process of a one-dimensional black-box function using Bayesian optimization. The blue region represents the standard deviation determined by the covariance function. In the Bayesian optimization process, (i) the mean and covariance functions are calculated by Gaussian process regression, and then the acquisition function is calculated. Then, (ii) new data is obtained with reference to the maximum of the acquisition function. Bayesian optimization finds the optimal solution by iterating (i) and (ii).

BO を用いて目的関数を最適化するために用いる,  $n$  個の  $\mathbf{x}_{\text{BO}}$  と  $y_{\text{BO}}$  を,  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(i)$  および  $y_{\text{BO}}(i)$  ( $i = 1, 2, \dots, n$ ) と表す. また,  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(1:n) \equiv [\mathbf{x}_{\text{BO}}(1), \mathbf{x}_{\text{BO}}(2), \dots, \mathbf{x}_{\text{BO}}(n)]^T$  と  $y_{\text{BO}}(1:n) \equiv [y_{\text{BO}}(1), y_{\text{BO}}(2), \dots, y_{\text{BO}}(n)]^T$  を定義し,  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(i)$  および  $y_{\text{BO}}(i)$  の組み合わせを  $n$  個含むデータセットを  $D(1:n) \equiv \{\mathbf{x}_{\text{BO}}(1:n), y_{\text{BO}}(1:n)\}$  と表す. 本研究では  $n$  を蓄積データ数と呼ぶ.

共分散関数は任意の 2 つの  $\mathbf{x}_{\text{BO}}$  についての相関を表し, カーネル関数と呼ばれる. カーネル関数は多数提案されているが [179], 本研究では一般的に BO のために用いられるカーネル関数のひとつである Matérn5/2 カーネルを用いる [180-182]. Matérn5/2 関数は次式で表される [179].

$$k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(i), \mathbf{x}_{\text{BO}}(j)) = \alpha^2 \left( 1 + \sqrt{5}r + \frac{5}{3}r^2 \right) \exp(-\sqrt{5}r) \quad (2.78)$$

ただし,  $r$  は次式で定義する.

$$r = \frac{\|\mathbf{x}_{\text{BO}}(i) - \mathbf{x}_{\text{BO}}(j)\|}{\beta} \quad (2.79)$$

ここで,  $\|\cdot\|$  はユークリッド距離を表す.  $\alpha$  と  $\beta$  はハイパーパラメータであり, 目的関数を最小化するための反復計算の過程で動的に決定される [179].

データセット  $D(1:n)$  を用いて GPR を行い, その結果として得られる  $y_{\text{BO}}(1:n)$  についての PDF を事前分布と呼ぶ. 事前分布は, 平均が  $\mathbf{0}$  となるように正規化すると, 多変量ガウス分布に従って次のように表される [179].

$$y_{\text{BO}}(1:n) \sim N(\mathbf{0}, \mathbf{K}) \quad (2.80)$$

ここで,  $N(\mathbf{0}, \mathbf{K})$  は平均  $\mathbf{0}$ , 共分散行列が  $\mathbf{K}$  の多変量ガウス分布を表す.  $\mathbf{K}$  は次式で定義される.

$$\mathbf{K} = \begin{bmatrix} k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(1), \mathbf{x}_{\text{BO}}(1)) & \cdots & k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(1), \mathbf{x}_{\text{BO}}(n)) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(n), \mathbf{x}_{\text{BO}}(1)) & \cdots & k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(n), \mathbf{x}_{\text{BO}}(n)) \end{bmatrix} \quad (2.81)$$

新たに任意の  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)$  が得られた場合を考える. GPR では,  $y_{\text{BO}}(1:n)$  と  $y_{\text{BO}}(*)$  は次のように表すことができる [62].

$$\begin{bmatrix} y_{\text{BO}}(1:n) \\ y_{\text{BO}}(*) \end{bmatrix} \sim N \left( \mathbf{0}, \begin{bmatrix} \mathbf{K} & \mathbf{k} \\ \mathbf{k}^T & k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*), \mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) \end{bmatrix} \right) \quad (2.82)$$

ここで,  $\mathbf{k}$  は次式で定義されるベクトルである.

$$\mathbf{k} = [k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*), \mathbf{x}_{\text{BO}}(1)) \quad k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*), \mathbf{x}_{\text{BO}}(2)) \quad \cdots \quad k(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*), \mathbf{x}_{\text{BO}}(n))]^T \quad (2.83)$$

したがって,  $D(1:n)$  と  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)$  が同時に得られた場合の  $y_{\text{BO}}(*)$  の条件付き PDF は, 次式で表される.

$$p(y(*) | D(1:n), \mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) = N(\mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)), \sigma_n^2(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))) \quad (2.84)$$

式(2.84)で表される PDF は事後分布と呼ばれる。  $\mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  と  $\sigma_n^2(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  は、それぞれ事後平均と事後分散である。  $\mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  は次式で計算される。

$$\mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) = \mathbf{k}^T \mathbf{K}^{-1} \mathbf{y}(1:n) \quad (2.85)$$

また、  $\sigma_n^2(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  は次式で計算される。

$$\sigma_n^2(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) = k((\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)), (\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))) - \mathbf{k}^T \mathbf{K}^{-1} \mathbf{k} \quad (2.86)$$

ここで、  $\mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  と  $\sigma_n^2(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  は、  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)$  に対して返される  $y_{\text{BO}}(*)$  のガウス分布の平均と分散を表す。

## 2.4.2 獲得関数

獲得関数は、既に得られているデータセット  $D(1:n)$  に基づき、目的関数の最大値または最小値を取り得る  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(n+1)$  を決定するために用いられる。獲得関数には、改善率に基づく関数や信頼区間を基準とする関数が提案されている [62]。目的関数を最小化する場合に使用される代表的な獲得関数としては、期待値改善率 (Expected improvement, EI) と信頼下限 (lower confidence bound, LCB) が存在する。いずれの獲得関数も、式(2.85)と式(2.86)によって計算される平均  $\mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  と標準偏差  $\sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  を用いて定義される。BO では多くの場合で、獲得関数を最大化する  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)$  を、次に得るべき  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(n+1)$  として選択する。

EI 獲得関数は次式で定義される [62, 183]。

$$a_{\text{EI}}(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) = \begin{cases} (f_{\text{obj}}(\mathbf{x}_{\text{BO}}^{\min}) - \mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) - \xi) \Phi(Z) + \sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) \phi(Z) & (\sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) > 0) \\ 0 & (\sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) = 0) \end{cases} \quad (2.87)$$

ただし、 $Z$  は次式のように定義する。

$$Z = \begin{cases} \frac{f_{\text{obj}}(\mathbf{x}_{\text{BO}}^{\min}) - \mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) - \xi}{\sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))} & (\sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) > 0) \\ 0 & (\sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) = 0) \end{cases} \quad (2.88)$$

ここで、 $\phi(\cdot)$  および  $\Phi(\cdot)$  はそれぞれ、PDF と累積分布関数である。  $\mathbf{x}_{\text{BO}}^{\min}$  は、データセット  $D(1:n)$  に含まれる最小の出力  $y_{\text{BO}}^{\min} = f_{\text{obj}}(\mathbf{x}_{\text{BO}}(i))$  が得られる  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(i)$  を意味する。  $\xi$  は、BO による最適化反復の過程で行われる活用戦略と探索戦略のトレードオフを決定するハイパーパラメータであり、 $\xi \geq 0$  である。ここで、活用戦略とは、  $\mathbf{x}_{\text{BO}}^{\min}$  の近傍領域を  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(n+1)$  として提案することで、局所最適化を行うことを意味する。探索戦略とは、データが少なく、  $y_{\text{BO}}^{\min}$  よりも小さな  $y_{\text{BO}}(n+1)$  が得られる可能性を持つ領域を  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(n+1)$  として提案することで、大域探索を行うことを意味する。BO は、活用戦略と探索戦略のトレードオフを適切に設定することで、効率的に最適化が可能である。EI 獲得関数においては、  $\xi$  が小さい場合には、  $\mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  の減少に伴い  $a_{\text{EI}}(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  が増加するため、活用戦略を重視する。逆に  $\xi$  が大きいと、  $\sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  が増加するほど  $a_{\text{EI}}(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*))$  が増加するため、探索戦略を重視する。

LCB 獲得関数は次式で定義される [62].

$$a_{\text{LCB}}(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) = -\mu_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) + \kappa\sigma_n(\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)) \quad (2.89)$$

ここで,  $\kappa$  は LCB 獲得関数における活用戦略と探索戦略を決定するハイパーパラメータであり,  $\kappa \geq 0$  である.  $\kappa$  も  $\xi$  と同様に, 値が小さいほど活用戦略を, 大きいほど探索戦略を重視する.

本研究で BO を使用する第 5 章と第 7 章では, 新材料開発や実験プロセスの最適化など, 様々な問題 [65-67, 182] に対して広く用いられている EI 獲得関数を用いる.

#### 2.4.3 ベイズ最適化の計算フローチャート

Figure 2.9 に, BO を使用する最適化計算のフローチャートを示す.

Step 1:  $\mathbf{x}_{\text{BO}}$  に含まれる, 最適化されるそれぞれのパラメータが取りうる値の範囲を定義する.

Step 2: データセット  $D(1:n)$  を作成する. Step 1 で設定した範囲内のパラメータを含む任意の  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(i)$  ( $i = 1, 2, \dots, n$ ) と,  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(i)$  に対応する  $y_{\text{BO}}(i)$  を得る. ここで,  $n \geq 1$  である.

Step 3:  $D(1:n)$  を用いて, GPR (式(2.80)) によって事前分布を計算する.

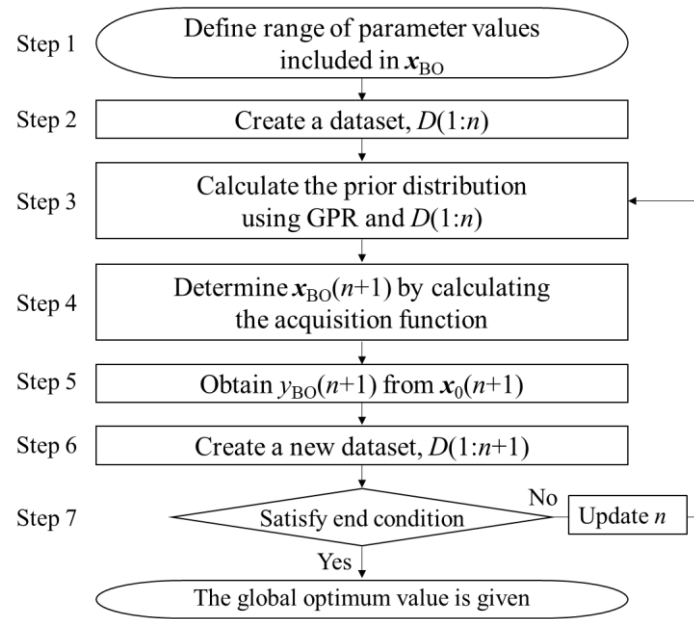
Step 4: 獲得関数を計算し, 獲得関数が最大となる  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(*)$  を,  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(n+1)$  とする.

Step 5:  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(n+1)$  に対応する  $y_{\text{BO}}(n+1)$  を得る.

Step 6:  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(n+1)$  と  $y_{\text{BO}}(n+1)$  の組み合わせを新たに加えたデータセット  $D(1:n+1)$  を作成する.

Step 7: 蓄積データ数  $n$  を更新しつつ, 終了条件を満たすまで Step 3 から Step 6 を繰り返す. 終了条件を満たす時点までに得られた, 最大また最小となる出力が得られる  $\mathbf{x}_{\text{BO}}(i)$  が, BO によって得られる大域最適解である.

Step 7 で用いる終了条件は, BO を適用する最適化問題の種類や  $y_{\text{BO}}$  の取得コスト等を考慮し, BO 使用者が決定する. 終了条件は, 例えば最小化問題の場合は,  $y_{\text{BO}}^{\min}$  が指定した値以下となる,  $n$  の更新による  $y_{\text{BO}}^{\min}$  の変化が生じなくなる,  $n$  の更新による  $y_{\text{BO}}^{\min}$  の変化率が一定以下となる, または  $n$  が事前に決定した上限値に達する, などの設定方法がある.



**Fig. 2.9** Flowchart for finding maximum/minimum value of the objective function using BO.



## 第 3 章

# データ同化による固相焼結の材料パラメータの 高精度推定技術の開発

### 3.1 緒言

フェーズフィールド (PF) シミュレーションによって、固相焼結中のマイクロ組織形成を定量的に予測するためには、2.1 節に示した固相焼結 PF モデルに含まれる、原子の拡散係数や、材料の緻密化速度を決定するモデルパラメータが必要である。銅や銀などの一般的な物質であれば、物性値は実験や分子動力学 (MD) シミュレーションで得られたデータが存在する [76-83]。しかしながら、モデルパラメータについては、特定の材料に対して明確な値は特定されていない。特に、焼結によって作製される材料の中でも、多結晶型高温超伝導材料 [109, 110] のように複雑な組成と結晶構造を持つ材料については、物性値データの数はごく僅かである。固相焼結 PF シミュレーションのために、データが存在しない材料の物性値をすべて実験や計算で取得することは困難である。また、固相焼結のモデルパラメータの中には、粒子の緻密化速度を決定するパラメータのように、物性値から決定する方法論が未だ確立されていないものが存在する。

そこで本章では、アンサンブル 4 次元変分法 (En4DVar) と固相焼結 PF シミュレーションを組み合わせて開発した新しい数値計算の枠組み (En4DVar-PF モデル) を用いて、焼結中の材料の状態と、固相焼結 PF シミュレーションで必要となる複数の物性値とパラメータを推定する。En4DVar-PF モデルの検証のために、データ同化の研究分野において一般的に行われる数値実験である双子実験 [184, 185] を行う。双子実験の対象とする焼結材料は、物性値が文献から [79-83] 得られる銀粒子を選択する。双子実験を通じて、En4DVar-PF モデルが、固相焼結粒子の実験観察できない状態や未知の材料パラメータを推定することが可能な強力な数値計算手法であることを実証する。

## 3.2 固相焼結フェーズフィールドモデルへの

### アンサンブル 4 次元変分法の実装と双子実験

#### 3.2.1 双子実験の概念

En4DVar-PF モデルを使用して推定される、焼結体の状態や材料パラメータの推定精度や妥当性を検証するために、双子実験を行う。Figure 3.1 に、En4DVar を含む、4 次元変分法 (4DVar) を基礎とするデータ同化手法を使用した双子実験の流れを示す。双子実験でははじめに、事前に真であると仮定した初期状態や材料パラメータを用いて PF シミュレーションを行う (Fig. 3.1, Step 1)。そして、得られるシミュレーション結果を、真の状態変化であると仮定して疑似観測データとして扱う。特に本研究では、実際の実験からは焼結粒子の形態データのみが得られることを仮定し、PF シミュレーションによって得られる情報のうち、粒子形状を表す密度場  $\rho$  のみを疑似観測データとして使用する。次に、シミュレーションの初期状態と推定する材料パラメータについて任意の値を設定し、得られるシミュレーション結果と疑似観測データを用いてデータ同化を行う (Fig. 3.1, Step 2)。4DVar を基礎とするデータ同化では、任意に定めた初期状態と材料パラメータが、疑似観測データの時間発展を再現するように修正される。そして、En4DVar-PF モデルで推定された状態や材料パラメータを、事前に真と仮定した状態変化や材料パラメータと比較することで、推定結果の精度と妥当性を評価することが可能である (Fig. 3.1, Step 3)。

En4DVar を使用するデータ同化では、Fig 3.1 に示すように焼結粒子の初期状態を推定することも可能である。しかしながら、粒子の初期状態は 3 次元の実験観察 [118-120] で取得可能であり、2 次元の走査型電子顕微鏡 (SEM) 像 [113-117] から決定することもできる。また、粒界の初期分布については、初期の粒子分布から推測することも可能である [186]。したがって、本研究で行う双子実験では、粒子と粒界の初期状態が既知であることを仮定する。

En4DVar-PF モデルの原理的には、任意の数の材料パラメータを同時に推定することができる。本研究では、2.1 節に示した PF モデルに含まれる物性値とパラメータのうち、原子の表面拡散係数  $D_{\text{surf}}$ 、粒界拡散係数  $D_{\text{gb}}$ 、並進運動モビリティ  $m_{\text{tr}}$ 、粒界モビリティ  $M_{\eta}$  の 4 種類を推定対象とする。これらの材料パラメータは、固相焼結中のマイクロ組織進展に強く影響を及ぼす。 $m_{\text{tr}}$  と  $M_{\eta}$  は、それぞれ焼結粒子の緻密化速度と粒成長速度を決定する。また、 $D_{\text{surf}}$  や  $D_{\text{gb}}$  は、一般的には体積拡散係数  $D_{\text{vol}}$  や気相拡散係数  $D_{\text{vap}}$  と比較して 2 桁程度大きい [43, 79-81]。したがって、固相焼結で生じる 4 種類の原子の拡散経路の拡散係数のうち特に  $D_{\text{surf}}$  と  $D_{\text{gb}}$  の値が、焼結過程のマイクロ組織進展に強く影響すると考えられる。

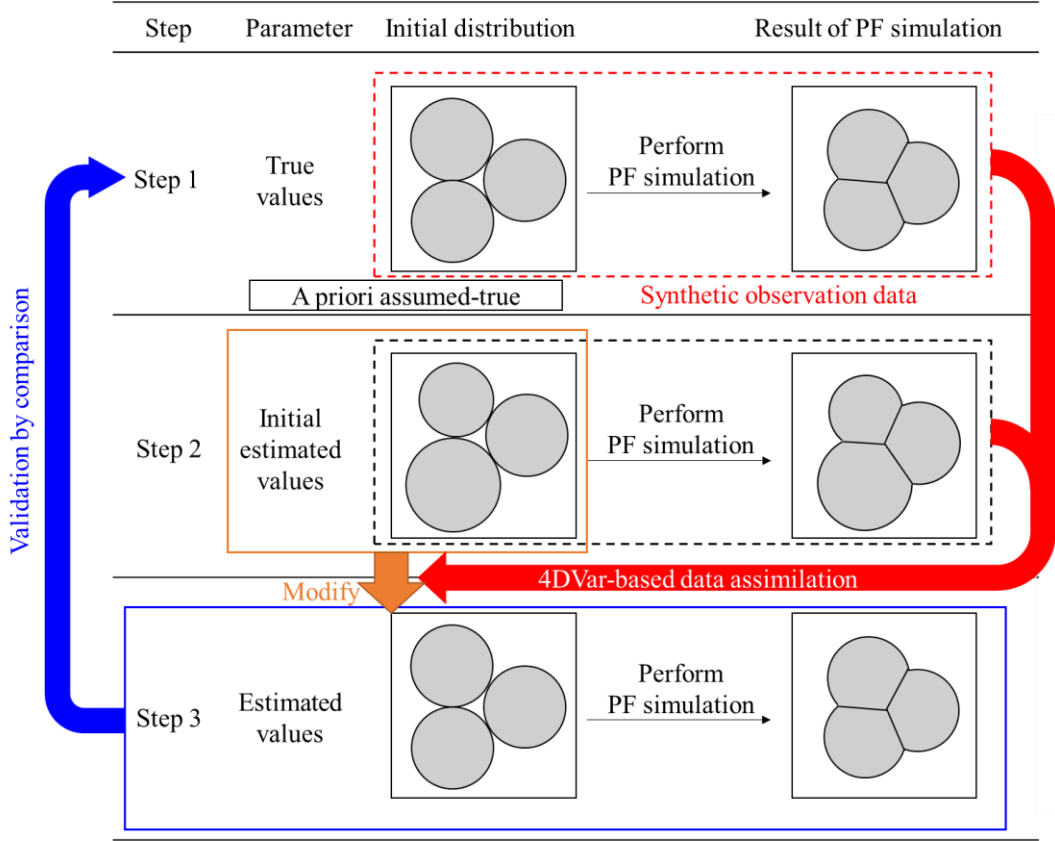


Fig. 3.1 Flowchart of twin experiment for validation of 4DVar-based data assimilation method.

### 3.2.2 状態ベクトルと観測ベクトルの定義

En4DVar-PF モデルを用いて、固相焼結の状態推定と材料パラメータ推定を行うために、以下に示す拡大状態ベクトル  $\mathbf{x}_t$  と観測ベクトル  $\mathbf{y}_t$  を定義する。以降、 $l_{\text{point}}$  は有限差分格子点の数、 $m_{\text{point}}$  は観測データが得られる座標点（観測点）の数とする。さらに、 $l_{\text{point}} \geq m_{\text{point}}$  であることを仮定する。これらの変数を用いて、拡大状態ベクトル  $\mathbf{x}_t$  を次式で定義する。

$$\mathbf{x}_t = \left[ \boldsymbol{\rho}_t^T \boldsymbol{\eta}_t^T D_{\text{surf}} D_{\text{gb}} m_{\text{tr}} M_{\eta} \right]^T \quad (3.1)$$

ここで、 $\boldsymbol{\rho}_t$  と  $\boldsymbol{\eta}_t$  はそれぞれ、時刻  $t$  における、計算領域に含まれるすべての規則差分格子点での密度場  $\rho$  および方位場  $\eta_i$  で構成されるベクトルである。 $\boldsymbol{\rho}_t$  と  $\boldsymbol{\eta}_t$  の次元は、それぞれ  $l_{\text{point}}$  および  $(l_{\text{point}} \times N)$  である。 $N$  は計算領域に含まれる焼結粒子の数である。 $\mathbf{x}_t$  の次元は  $((N+1) \times l_{\text{point}} + 4)$  である。 $t=0$  でのアンサンブルメンバー  $\mathbf{x}_0^{f(s)}$  は次式で表される。

$$\mathbf{x}_0^{f(s)} = \left[ \boldsymbol{\rho}_0^T \boldsymbol{\eta}_0^T D_{\text{surf}}^{f(s)} D_{\text{gb}}^{f(s)} m_{\text{tr}}^{f(s)} M_{\eta}^{f(s)} \right]^T \quad (3.2)$$

ここで、 $D_{\text{surf}}^{f(s)}$ ,  $D_{\text{gb}}^{f(s)}$ ,  $m_{\text{tr}}^{f(s)}$ ,  $M_{\eta}^{f(s)}$  は、各アンサンブルメンバーに含まれる、推定される材料パラメータである。これらの値の初期推定値は、平均と標準偏差を設定し、ガウス分布を用いてランダムに決定する。それぞれの材料パラメータの平均値は、評価関数  $J(\mathbf{w}_k)$  を最小化する反復計算を開始する前、つまり最小化反復計算の回数  $k=0$  における、 $D_{\text{surf}}$ ,  $D_{\text{gb}}$ ,  $m_{\text{tr}}$ ,  $M_{\eta}$  と等しい。

双子実験で実際に与える平均や標準偏差は、以降の節で説明する。

観測ベクトル  $\mathbf{y}_t$  は次式で定義する。

$$\mathbf{y}_t = [\boldsymbol{\rho}'^T] \quad (3.3)$$

ここで  $\boldsymbol{\rho}'$  は、時刻  $t$  における、疑似観測データにおける観測点での  $\rho$  で構成される、 $m_{\text{point}}$  次元のベクトルである。式(3.3)のように  $\mathbf{y}_t$  を定義するため、観測演算子  $H_t$  は次式で定義するように  $\mathbf{x}_t$  に作用する。

$$H_t(\mathbf{x}_t) = [\bar{\boldsymbol{\rho}}^T] \quad (3.4)$$

ここで、 $\bar{\boldsymbol{\rho}}$  は  $m_{\text{point}}$  次元のベクトルであり、観測点と同じ座標の規則差分格子点における  $\rho$  によって構成される。

### 3.2.3 疑似観測データ

本節では、双子実験で行われる固相焼結 PF シミュレーションの条件を示す。ベンチマーク問題として、比較的物性値が明らかな銀粒子の固相焼結を対象として選択し、状態推定と材料パラメータ推定を行う。

**Table 3.1** に、固相焼結 PF シミュレーションに用いる物性値と材料パラメータを示す。焼結温度は、600 °C で一定とする [187]。銀の融点よりも十分に低い温度で焼結を行うため、気相での質量輸送は非常に小さいと考えられる [188]。先行研究で行われた固相焼結 PF シミュレーションでは、焼結温度が融点よりも十分低い場合、気相の拡散係数は体積の拡散係数の 10 ~ 50 % の値に設定された [43, 124, 126]。したがって、本研究でも気相拡散係数  $D_{\text{vap}}$  は体積拡散係数  $D_{\text{vol}}$  よりも小さな値を設定する。実際の剛性係数  $k_{\text{st}}$  の値は不明であるため、仮定値を使用する。回転運動モビリティ  $m_{\text{ro}}$  についても仮定の値を使用し、先行研究と同じく、 $m_{\text{ro}}$  は並進運動モビリティの仮定した真値  $m_{\text{tr}}^{\text{true}}$  よりも小さい値とする。 $m_{\text{tr}}^{\text{true}}$  の詳細は後述する。

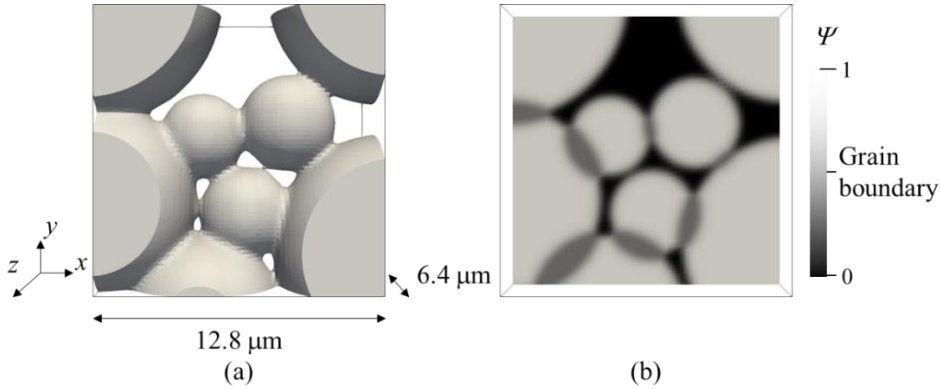
**Figure 3.2** に、粒子と粒界の初期分布を示す。この初期分布は、**Fig. 1.1** に示す領域(i)を参考に作成した。計算領域の大きさは  $12.8 \times 12.8 \times 6.4 \mu\text{m}^3$  とする。計算領域内に 8 個の球形粒子を配置する。ここで、粒界の分布を表現するために、方位場  $\eta_i$  の二乗和  $\Psi$  を次式で定義する。

$$\Psi = \sum_i^N (\eta_i)^2 \quad (3.5)$$

$\Psi = 0.5$  の領域が粒界を表す。**Figure 3.2 (b)** に示すように、初期状態では、球形状粒子が重なった領域を粒界として設定する。そのため、計算開始時は粒界の幅が **Table 3.1** に示される界面幅  $\delta$  よりも大きい、この粒界幅は計算開始後ただちに自動で  $\delta$  の幅に修正される。境界条件は、すべての計算領域境界で零ノイマン条件を設定する。

**Table 3.1** Silver physical properties and parameters used in the PF simulations of solid-state sintering.

Parameter	Value	Reference
Gradient energy coefficients of $\rho$ , $\kappa_\rho$	$9.78 \times 10^{-4}$ J/m	[124]
Gradient energy coefficients of $\eta_i$ , $\kappa_\eta$	$4.74 \times 10^{-4}$ J/m	[124]
Constant in Eq. (2.2), $A$	$1.50 \times 10^4$ J/m <sup>3</sup>	[124]
Constant in Eq. (2.2), $B$	$1.32 \times 10^3$ J/m <sup>3</sup>	[124]
Gas constant, $R$	8.314 J/(K·mol)	
Molar volume of silver, $V_m$	$10.27 \times 10^{-6}$ m <sup>3</sup> /mol	[78]
Bulk diffusion coefficient of silver atoms, $D_{\text{vol}}$	$3.00 \times 10^{-16}$ m <sup>2</sup> /s	[79]
Vapor diffusion coefficient of silver atoms, $D_{\text{vap}}$	$5 \times 10^{-17}$ m <sup>2</sup> /s	
Equilibrium value of $\rho$ in grain boundaries, $\rho_0$	0.98	[43]
Threshold value, $c$	0.14	[43]
Stiffness constant, $k_{\text{st}}$	0.1 J/m <sup>3</sup>	
Rotation mobility, $m_{\text{ro}}$	$1.00 \times 10^{-12}$ m <sup>5</sup> /(J·s)	
Temperature, $T$	873.15 K	[187]
Thickness of particle surface/grain boundary region, $\delta$	0.6 $\mu\text{m}$	
Spacing between finite difference grids, $\Delta x$ , $\Delta y$ , $\Delta z$	0.2 $\mu\text{m}$	
Time increment, $\Delta t$	0.1 ms	



**Fig. 3.2** Initial distributions of particles and grain boundaries used for PF simulations of sintering of silver particles. The region of  $\rho > 0.5$  is shown in (a), and the distribution of the sum of the orientation,  $\Psi$ , over the cross-section at  $z = 3.2 \mu\text{m}$  is shown in (b).  $\Psi = 0.5$  regions correspond to grain boundaries.

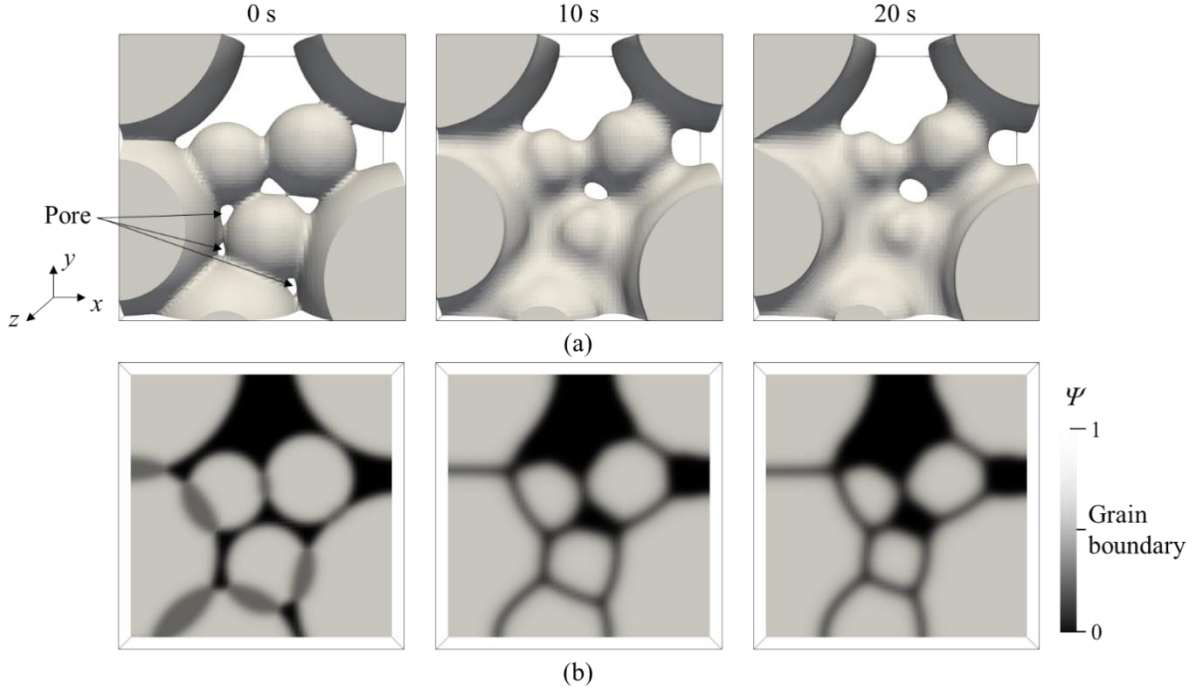
本研究で使用する固相焼結 PF モデルは、粒子数と同じ数の PF 変数 $\eta_i$ の時間発展を計算するため、計算コストが大きい。そこで、本研究で固相焼結 PF シミュレーションを計算する際には、Message Passing Interface (MPI) ライブラリ [189] と Compute Unified Architecture (CUDA) ライブラリ [190] を併用し、複数の Central Processor Unit (CPU) と Graphical Processor Unit (GPU) を用いた並列計算によって計算を高速化する。

**Table 3.2** に、推定する 4 つのパラメータについての、仮定の真値である $D_{\text{surf}}^{\text{true}}$ ,  $D_{\text{gb}}^{\text{true}}$ ,  $m_{\text{tr}}^{\text{true}}$ ,  $M_{\eta}^{\text{true}}$ の値を示す。 $D_{\text{surf}}^{\text{true}}$ ,  $D_{\text{gb}}^{\text{true}}$ は文献から決定した [80, 81]。  $m_{\text{tr}}^{\text{true}}$ と $M_{\eta}^{\text{true}}$ は現実の値が不明なため、銀粒子の緻密化や粒成長が生じるように設定した仮定の値である。なお、疑似観測データを作成する際には、**Table 3.2** に示した材料パラメータの値を使用する。

**Table 3.2** True values of material parameters to be estimated by the En4DVar-PF model.

Material parameter	Value	Reference
Diffusion coefficient of silver atoms on particle surfaces, $D_{\text{surf}}^{\text{true}}$	$1.47 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$	[80]
Diffusion coefficient of silver atoms at grain boundaries, $D_{\text{gb}}^{\text{true}}$	$1.28 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$	[81]
Translation mobility, $m_{\text{tr}}^{\text{true}}$	$1.00 \times 10^{-10} \text{ m}^5/(\text{J} \cdot \text{s})$	
Mobility of grain boundary migration, $M_{\eta}^{\text{true}}$	$2.00 \times 10^{-7} \text{ m}^3/(\text{J} \cdot \text{s})$	

**Figure 3.3** に、材料パラメータの真値を使用して得られる固相焼結 PF シミュレーションの結果を示す。この結果には、粒子間で生じるネック成長と、初期状態で存在した複数の空隙の消失、粒界移動、粒成長といった固相焼結で生じる現象が現れている。本研究では 3.2.1 項で述べたように、**Fig. 3.3 (a)**に示される密度場 $\rho$ の時間変化のみを双子実験の疑似観測データとして用いる。観測データは、有限差分格子上的 $\rho$ の 3 次元分布とする。観測データの時間間隔 $\nu$ と固相焼結 PF シミュレーションの終了時刻  $t_{\text{end}}$  は、3.3~3.5 節では $\nu = 1 \text{ s}$ ,  $t_{\text{end}} = 20 \text{ s}$  とする。3.6 節では $\nu$ と材料パラメータの推定精度の関係を調査するために、 $\nu = 5 \text{ s}$ ,  $t_{\text{end}} = 20 \text{ s}$  または  $100 \text{ s}$  とする。



**Fig. 3.3** Snapshots of the true state obtained by the PF simulation using the true values in **Table 3.2**. The region of  $\rho > 0.5$  is shown in (a), and the distribution of the sum of the squares of the orientation,  $\Psi$ , over the cross-section at  $z = 3.2 \mu\text{m}$  is shown in (b).  $\Psi = 0.5$  regions correspond to grain boundaries. The three-dimensional distributions of  $\rho$  shown in (a) are used as the synthetic observational data.

### 3.3 最適アンサンブルサイズの決定

En4DVar では、評価関数の勾配  $\nabla J(\mathbf{w}_k)$  を計算するために、アンサンブル近似を用いる。そのため、状態や材料パラメータの推定精度は、アンサンブルサイズ  $N_e$  に依存する。一方で、アンサンブルメンバー  $\mathbf{x}_0^{(s)}$  を生成するための計算時間は、 $N_e$  に比例する。 $N_e$  が小さいほど計算コストは減少するが、アンサンブル近似の精度が低いため、推定結果がランダムに生成される  $\mathbf{x}_0^{(s)}$  の組み合わせによって変化しやすくなる。逆に  $N_e$  が大きいほどアンサンブル近似の精度が高くなり、 $\mathbf{x}_0^{(s)}$  の組み合わせに依存した推定結果の変化は抑制されるが、計算コストは増大する。したがって、高い推定精度と実用的な計算コストを両立するためには、状態や材料パラメータの推定結果の変動を考慮して  $N_e$  を決定する必要がある。そこで本節では、適切な  $N_e$  を決定するために、 $N_e$  の変化による材料パラメータの推定結果の変動を調査する。

様々な  $N_e$  を使用して材料パラメータの推定精度を調査するために、 $N_e = 20, 50, 100$  でそれぞれ 7 回ずつ双子実験を行う。そして、各  $N_e$  について、推定された材料パラメータの値と真値との相対誤差の平均を評価する。相対誤差の平均は次式で計算する。

$$\varepsilon^{\text{mean}}(Y) = \frac{1}{7} \sum_n^7 \varepsilon^n(Y) \quad (3.6)$$

ここで,  $Y (Y = D_{\text{surf}}, D_{\text{gb}}, m_{\text{tr}}, M_{\eta})$  は推定されるパラメータの種類を表す.  $\varepsilon^n(Y)$  は 7 回行う双子実験のうち,  $n$  回目の結果から計算された相対誤差である.  $\varepsilon^n(Y)$  は次式で定義する.

$$\varepsilon^n(Y) = \frac{Y^{\text{est},n} - Y^{\text{true}}}{Y^{\text{true}}} \quad (3.7)$$

ここで,  $Y^{\text{true}}$  と  $Y^{\text{est},n}$  はそれぞれ, **Table 3.2** に示す材料パラメータの真値と,  $n$  回目の双子実験で推定された材料パラメータを表す. また, 推定された材料パラメータの試行ごとの変動を評価するために, 相対誤差の標準偏差  $\varepsilon^{\text{SD}}(Y)$  を計算する.  $\varepsilon^{\text{SD}}(Y)$  は次式で定義する.

$$\varepsilon^{\text{SD}}(Y) = \sqrt{\frac{1}{7} \sum_n^7 (\varepsilon^n(Y) - \varepsilon^{\text{mean}}(Y))^2} \quad (3.8)$$

本節では, 各  $N_e$  について  $\varepsilon^{\text{mean}}(Y)$  と  $\varepsilon^{\text{SD}}(Y)$  を評価することで, 最適な  $N_e$  を調査する.  $\varepsilon^{\text{mean}}(Y)$  と  $\varepsilon^{\text{SD}}(Y)$  は, 評価関数  $J(\mathbf{w}_k)$  を最小化する反復計算を事前に決定した回数行った後に得られる材料パラメータ推定結果から算出する. 反復回数は,  $J(\mathbf{w}_k)$  が収束すると期待できる回数として, 100 回に設定する.

**Table 3.3** に, 材料パラメータの初期推定値を決定するために使用する, ガウス分布の平均と標準偏差を示す. 推定される材料パラメータは, 実験や分子動力学シミュレーションから大まかにオーダーを見積もることができる. そのため, 本研究では初期推定値は真値の約 50% に設定する. 留意点として, En4DVar-PF モデルでは初期推定値が真値よりも大きな値でも推定できるが, 拡散係数やモビリティの値が大きい場合は計算の安定性のために時間増分を小さく設定する必要がある, 計算コストの増大を招く.

また, 予察的な検討の結果から, 観測誤差の大きさは  $\sigma = 0.1$ ,  $J(\mathbf{w}_k)$  を最小化するための繰り返し 1 回あたりの  $\mathbf{w}_k$  から  $\mathbf{w}_{k+1}$  への更新量は  $\alpha = 0.001$  とする.

**Table 3.3** Means and standard deviations (SDs) of Gaussian distribution used to determine the initially estimated material parameters for  $N_p$  ensemble members.

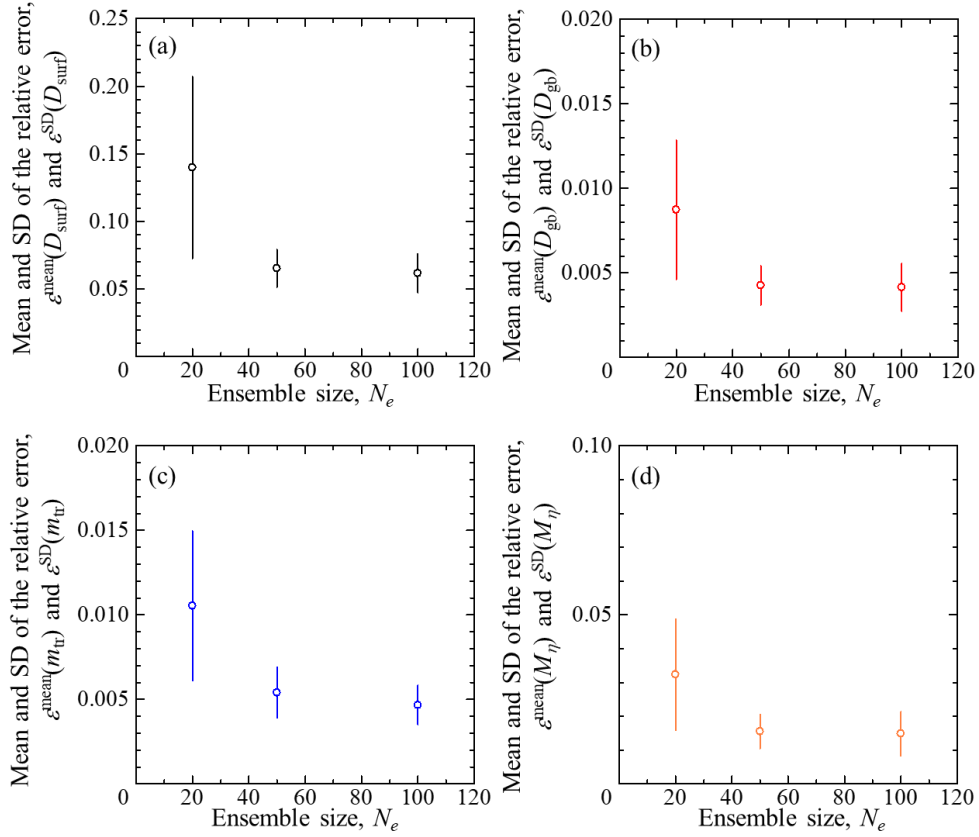
Material parameter	$D_{\text{surf}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$D_{\text{gb}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$m_{\text{tr}}$ [ $\text{m}^5/(\text{J}\cdot\text{s})$ ]	$M_{\eta}$ [ $\text{m}^3/(\text{J}\cdot\text{s})$ ]
Mean of ensemble members	$7.00 \times 10^{-13}$	$6.00 \times 10^{-11}$	$5.00 \times 10^{-11}$	$1.00 \times 10^{-7}$
SD of ensemble members	$7.00 \times 10^{-14}$	$6.00 \times 10^{-12}$	$5.00 \times 10^{-12}$	$1.00 \times 10^{-8}$

**Figure 3.4** に, 双子実験によって推定されたそれぞれの材料パラメータについての  $\varepsilon^{\text{mean}}(Y)$  と  $\varepsilon^{\text{SD}}(Y)$  を示す.  $N_e = 20$  の場合は  $N_e = 50, 100$  と比較して, 4 種類のパラメータすべてで  $\varepsilon^{\text{mean}}(Y)$  と  $\varepsilon^{\text{SD}}(Y)$  が大きい. これは,  $N_e = 20$  では真値を推定する精度が低く, 推定される値の変動が大きい,  $N_e \geq 50$  では改善することを意味する. また, **Figure 3.5 (a)** には, 評価関数  $J(\mathbf{w}_k)$  の最小化反復回数に対する  $J(\mathbf{w}_k)$  の平均値の変化を示す. すべての  $N_e$  で,  $k = 100$  までに  $J(\mathbf{w}_k)$  は収束する. この結果は, さらに多くの  $J(\mathbf{w}_k)$  の最小化反復計算を行っても, 材料パラメータの推定精度が大きく改善しないことを示す. また, **Fig. 3.4** に示す  $\varepsilon^{\text{mean}}(Y)$  と  $\varepsilon^{\text{SD}}(Y)$  と, **Fig. 3.5 (a)** に示す  $J(\mathbf{w}_k)$  から,  $N_e = 50$  と 100 では顕著な差が生じず,  $N_e \geq 50$  としても推定精度は向上しないこと

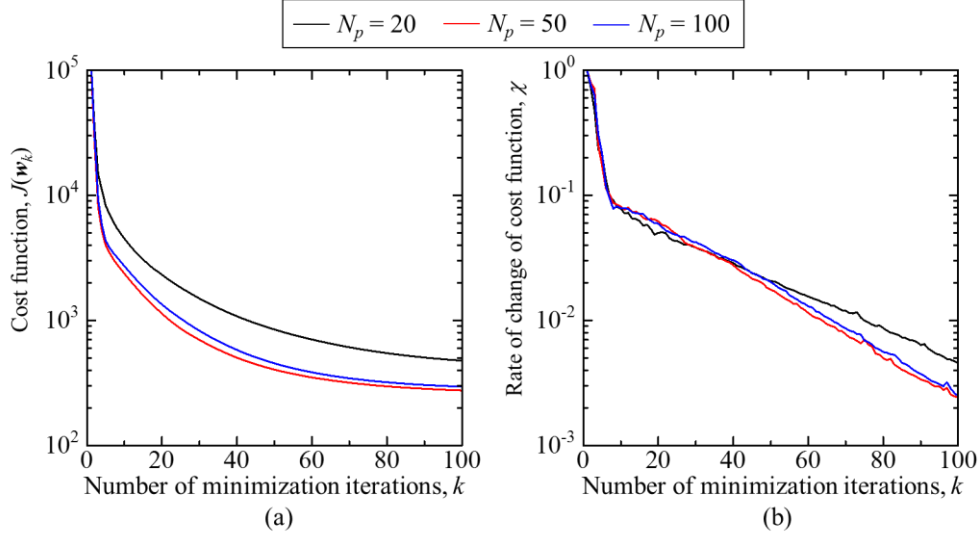


がわかる。したがって、本研究の PF モデルを用いて 4 種類のパラメータ推定を行う場合の最適なアンサンブルサイズは  $N_e = 50$  であるとし、以降の節では  $N_e = 50$  を使用する。

**Figure 3.5 (b)**には、式(2.77)で計算される、 $J(\mathbf{w}_k)$ の変化率 $\chi$ の平均の推移を示す。 $N_e = 50$  と 100 の  $k = 100$  においては、 $\chi$ の平均はおおよそ  $2.5 \times 10^{-3}$  である。この結果から、以降の節で用いる収束条件 $\xi_{\text{end}}$ は、 $\xi_{\text{end}} = 2.5 \times 10^{-3}$  とする。



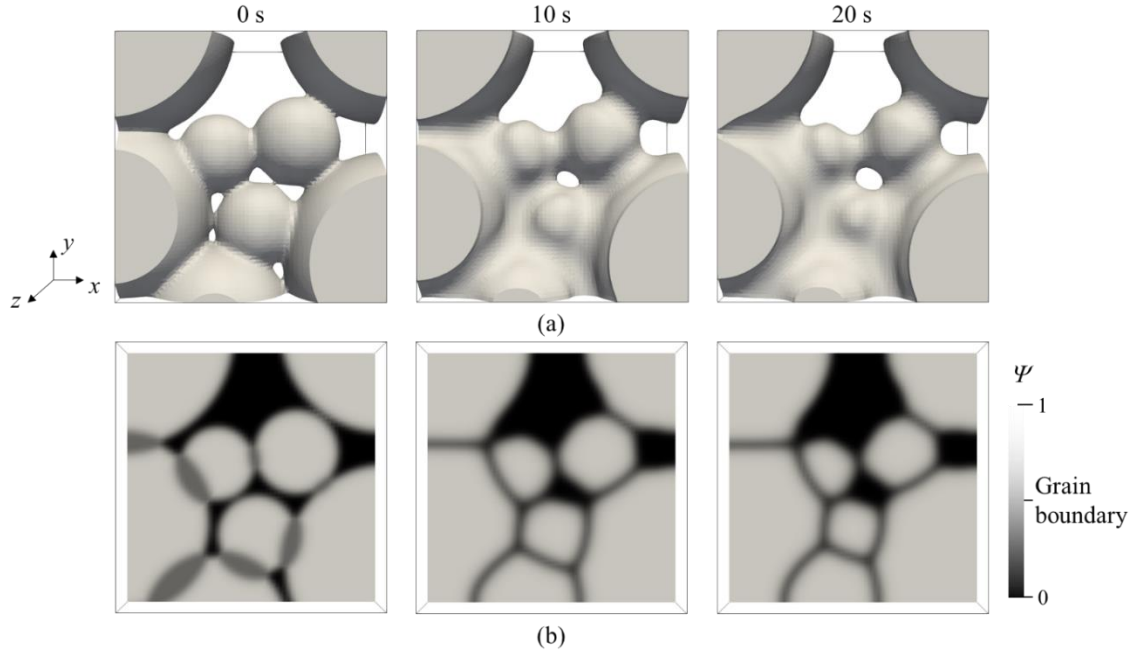
**Fig. 3.4** Mean and standard deviation of the relative error between the true and the estimated material parameters for (a)  $D_{\text{surf}}$ , (b)  $D_{\text{gb}}$ , (c)  $m_{\text{tr}}$ , and (d)  $M_{\eta}$ . The error bars indicate the standard deviations calculated from the results of the seven twin experiments.



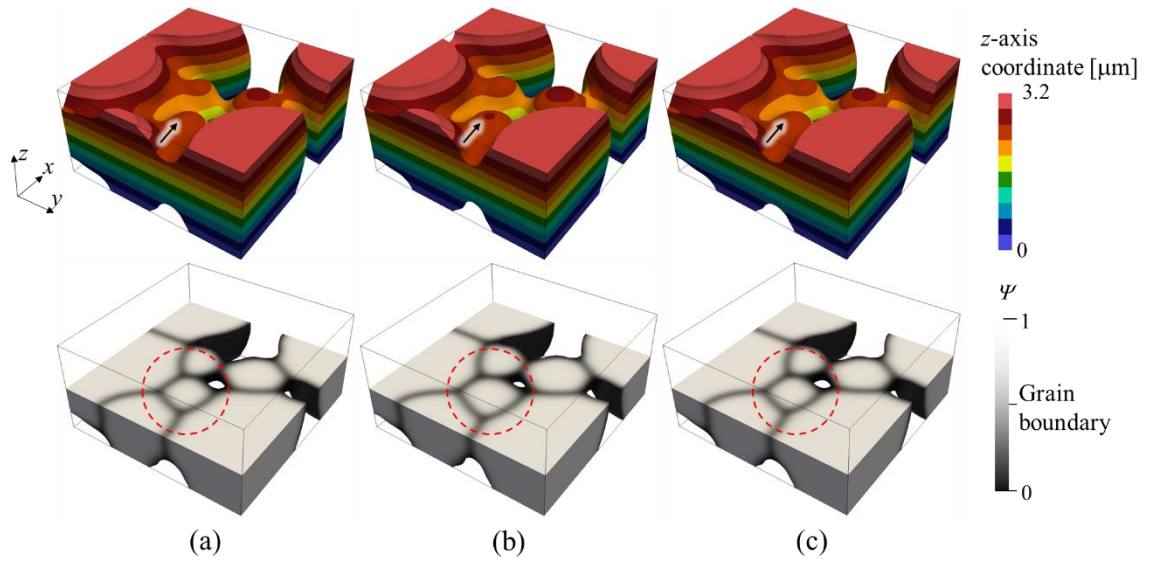
**Fig. 3.5** Transitions of (a) the mean of the cost function,  $J(\mathbf{w}_k)$ , and (b) the means for the change rate of the cost function,  $\chi$ , obtained from results of the seven twin experiments for  $N_e = 20, 50$ , and  $100$ .

### 3.4 状態推定およびパラメータ推定結果の評価

本節では、En4DVar-PF モデルによる状態とパラメータの推定精度を検証する。  $N_e = 50$  とし、推定する材料パラメータの初期推定値を決定するためのガウス分布の平均と標準偏差は、**Table 3.3** に示した値と等しい。**Figure 3.6** に、推定された銀粒子の形状と、 $z = 3.2 \mu\text{m}$  断面の粒界分布の時間変化のスナップショットを示す。推定された粒子形状と粒界分布は、**Fig. 3.3** に示す疑似観測データとよく一致する。**Figure 3.7** には、 $t = 20 \text{ s}$  における真の状態(**Fig. 3.7 (a)**)、初期推定値を使用して得られる状態(**Fig. 3.7 (b)**)、推定された状態(**Fig. 3.7 (c)**)を示す。これらの状態を比較するために、粒子表面を  $z$  軸に沿って色付けした。**Fig. 3.7 (a)**と **Fig. 3.7 (b)**を比較すると、黒矢印で示す粒子表面の高さや、赤い破線で示す粒子の大きさに差が見られる。これらの差は、 $D_{\text{surf}}$ ,  $D_{\text{gb}}$ ,  $m_{\text{tr}}$ ,  $M_\eta$ の初期推定値が、仮定した真値よりも小さいために生じる。例えば、**Fig. 3.7 (b)**に示される赤い破線で示す粒子は真の状態の粒子の大きさよりも大きい、これは  $M_\eta$ が $M_\eta^{\text{true}}$ よりも小さく、粒界移動速度が遅いためである。一方で、**Fig. 3.7 (a)**と **Fig. 3.7 (c)**を比較すると、両者の間に明確な差は確認できない。このことから、材料パラメータが真値に近い値に推定されたことがわかる。以下では、材料パラメータが En4DVar-PF モデルでどのように推定されたかを論ずる。

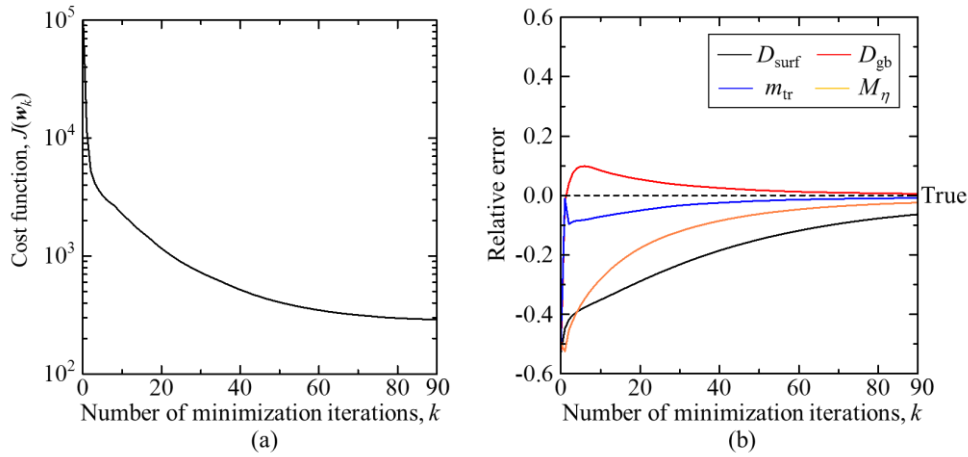


**Fig. 3.6** Snapshots of silver particles sintered for 20 s as estimated by the En4DVar-PF model. The region of  $\rho > 0.5$  is shown in (a), and the distribution of the sum of the squares of the orientation,  $\Psi$ , over the cross-section at  $z = 3.2 \mu\text{m}$  is shown in (b).  $\Psi = 0.5$  regions correspond to grain boundaries.



**Fig. 3.7** Comparison between the (a) true, (b) initially estimated, and (c) final estimated states of silver particles at  $t = 20 \text{ s}$ . The lower row shows the grain boundary distributions at  $z \leq 3.2 \mu\text{m}$ . There are differences between (a) and (b), as indicated by the black arrows and red dashed circles, but (c) is in good agreement with (a).

**Figure 3.8** (a)に、評価関数  $J(\mathbf{w}_k)$  の、最小化反復計算の回数  $k$  に対する推移を示す。  $J(\mathbf{w}_k)$  は単調減少し、ある値に収束する。収束条件は、  $k = 90$  時点で満たされる。  $k = 90$  以降は、  $J(\mathbf{w}_k)$  の減少量は十分に小さいため、収束条件  $\xi_{\text{end}}$  をさらに小さな値に設定した場合や、最小化反復の計算回数を増加させた場合でも、材料パラメータ推定の精度は改善しない。**Figure 3.8** (b) は、材料パラメータの推定値と真値の相対誤差の推移を示す。  $D_{\text{surf}}$  と  $M_\eta$  は滑らかに真値に向かって変化するのに対し、  $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  は  $k = 10$  までに急激に変化した後、緩やかに真値に収束する。固相焼結 PF シミュレーションでは、  $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  は僅かな値の変化で大きな状態変化を引き起こす材料パラメータである一方で、  $D_{\text{surf}}$  や  $M_\eta$  は値が変化しても大きな状態変化が生じにくい。そのため、  $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  が優先的に推定され、  $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  の変化に伴って  $J(\mathbf{w}_k)$  が  $k = 10$  までに大きく減少した。



**Fig. 3.8** Transitions of the (a) cost function,  $J(\mathbf{w}_k)$ , and (b) the relative errors between the true and estimated values of  $D_{\text{surf}}$ ,  $D_{\text{gb}}$ ,  $m_{\text{tr}}$ , and  $M_\eta$  as functions of the number of minimization iterations of the cost function,  $k$ . The estimation is performed with the ensemble members generated using the means and standard deviations in **Table 3.3**.

**Table 3.4** には、各材料パラメータの  $k = 90$  での推定値と真値の相対誤差を示す。  $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  についての相対誤差の絶対値は 1 %未満である。一方で、  $D_{\text{surf}}$  と  $M_\eta$  には 2 %以上の相対誤差が存在する。  $D_{\text{gb}}$  や  $m_{\text{tr}}$  に誤差が存在するにもかかわらず、**Fig. 3.7** に示すように真の状態は高精度に推定された。この結果は、  $D_{\text{surf}}$  と  $M_\eta$  の推定精度と比較して、  $D_{\text{gb}}$  や  $m_{\text{tr}}$  の推定精度が状態推定の推定精度に強く影響することを意味する。以上より、En4DVar-PF モデルで  $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  について高精度に（今回の場合では、推定値と真値の相対誤差の絶対値が 1 %以下で）推定することができれば、粒子形状に対応するデータのみから、焼結粒子と粒界の両状態を推定できると結論づける。

**Table 3.4** Relative errors between the true and finally estimated material parameters ( $k = 90$ ).

Material parameter	$D_{\text{surf}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$D_{\text{gb}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$m_{\text{tr}}$ [ $\text{m}^5/(\text{J}\cdot\text{s})$ ]	$M_{\eta}$ [ $\text{m}^3/(\text{J}\cdot\text{s})$ ]
True value	$1.47 \times 10^{-12}$	$1.28 \times 10^{-10}$	$1.00 \times 10^{-10}$	$2.00 \times 10^{-7}$
Estimated value	$1.38 \times 10^{-12}$	$1.29 \times 10^{-10}$	$0.99 \times 10^{-10}$	$1.95 \times 10^{-7}$
Relative error	-6.4 %	0.6 %	-0.8 %	-2.4 %

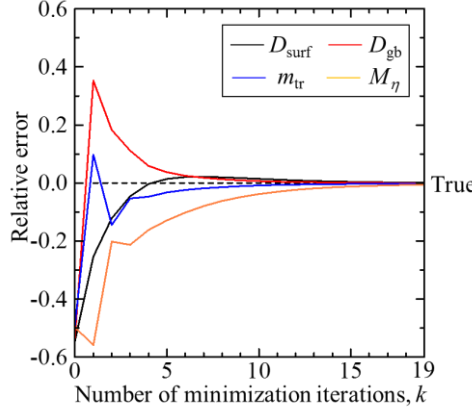
### 3.5 パラメータ推定精度の高精度化手法の検討

高精度な状態推定のためには、 $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  の推定値と真値の相対誤差の絶対値が 1 %未満となればよいことを前節で明らかにしたが、一方で  $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  についての推定値の相対誤差については、改善の余地がある。したがって、 $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  の推定精度を向上させる方法を検討する。本研究では、各材料パラメータの初期推定値の標準偏差の設定に着目した。この標準偏差を大きく設定すると、 $\mathbf{x}_0$  と  $\mathbf{x}_0^b$  の差の増加に伴う  $J(\mathbf{w}_k)$  の増加が抑えられるため、材料パラメータの推定値が、初期推定値から変化しやすくなる。また、標準偏差は推定する材料パラメータごとに個別に設定することができるため、推定精度を向上させる材料パラメータを選択することが可能である。そこで、 $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  の推定精度向上のために、 $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  の初期推定値の標準偏差を **Table 3.3** よりも大きく設定し、双子実験を行う。**Table 3.5** に、使用した設定値を示す。 $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  の初期推定値の標準偏差はそれぞれ、**Table 3.3** に示す値の 5 倍および 2 倍である。

**Table 3.5** Means and standard deviations (SDs) used to determine the initially estimated material parameters for accurate parameters estimation.

Material parameter	$D_{\text{surf}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$D_{\text{gb}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$m_{\text{tr}}$ [ $\text{m}^5/(\text{J}\cdot\text{s})$ ]	$M_{\eta}$ [ $\text{m}^3/(\text{J}\cdot\text{s})$ ]
Mean of ensemble members	$7.00 \times 10^{-13}$	$6.00 \times 10^{-11}$	$5.00 \times 10^{-11}$	$1.00 \times 10^{-7}$
SD of ensemble members	$3.50 \times 10^{-13}$	$6.00 \times 10^{-12}$	$5.00 \times 10^{-12}$	$2.00 \times 10^{-8}$

**Figure 3.9** に、**Table 3.5** に示す設定値を使用して得られた材料パラメータ推定結果の、真値との相対誤差の推移を示す。 $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  の推定精度が向上したのみならず、 $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  についての推定精度も向上し、すべての材料パラメータについての相対誤差の絶対値が 0.6 %未満となった。加えて、収束条件を満たすまでに必要な最小化反復回数が減少した。この結果から、材料パラメータ推定を高精度に行うためには、材料パラメータの初期推定値を決定するために使用する標準偏差を適切に調整することが重要であることが明らかになった。今回行った双子実験においては、 $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  の初期推定値の標準偏差は真値の 5 %程度、 $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  の初期推定値の標準偏差については真値の 10 %以上の値に設定することで、4 種類のパラメータの同時推定を高精度に行うことが可能である。これらの結果から、En4DVar-PF モデルを使用して固相焼結の材料パラメータを高精度に推定するためには、値が僅かに変化するだけで計算結果を大きく変化させる材料パラメータよりも、僅かな値の変動では計算結果に大きな変化をもたらさない材料パラメータについて、初期推定値の標準偏差を大きく設定することを推奨する。



**Fig. 3.9** Relative errors between the true and estimated values of  $D_{\text{surf}}$ ,  $D_{\text{gb}}$ ,  $m_{\text{tr}}$ , and  $M_{\eta}$  as functions of the number of minimization iterations of the cost function,  $k$ . The estimation is performed with the ensemble members generated using the means and SDs in **Table 3.5**.

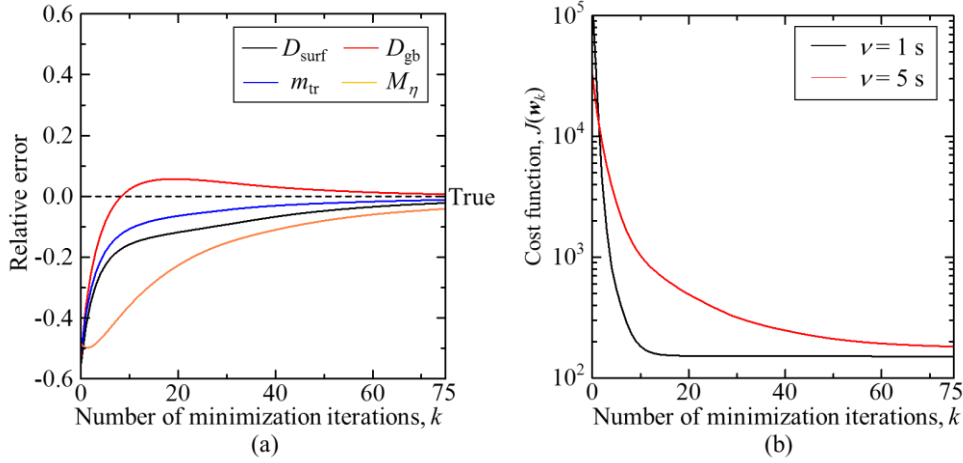
### 3.6 観測データの時間間隔が推定精度に及ぼす影響の調査

3.3 ~ 3.5 節に示した双子実験に用いた疑似観測データの時間間隔  $\nu$  は,  $\nu = 1$  s であった. しかしながら, 現実の実験観察で取得可能な観測データの時間間隔は, 多くの場合で 1 s よりも長い [115-120]. 例えば, Asoro ら [115] によって行われた, 走査型透過電子顕微鏡を用いたプラチナナノ粒子焼結のその場観察実験では, 観測データの時間間隔は 20 s である. また, X 線トモグラフィーを使用した 3 次元の焼結その場観察実験 [118-120] では, 観測データの時間間隔は数分以上である. そこで, 本節では, En4DVar-PF モデルを使用して推定される材料パラメータの推定精度と, 観測データの時間間隔の関係を調査する.

疑似観測データの時間間隔を  $\nu = 5$  s として, 双子実験を行う. この条件は, 実際に実験から得られる観測データの時間間隔よりも多くの場合で小さいが,  $\nu$  が増加した際の推定精度の変化を調査する目的に対しては十分であると考え. 双子実験で推定する材料パラメータの初期推定値は, **Table 3.5** に示した平均と標準偏差を用いて決定する. また, 固相焼結の PF シミュレーションは  $t = 0$  s から  $t_{\text{end}} = 20$  s まで行う.

**Figure 3.10 (a)** に,  $\nu = 5$  s の場合の, 各材料パラメータの推定値と真値の相対誤差の推移を示す. 推定値の変化は, **Fig. 3.9** に示す  $\nu = 1$  の場合と比較して緩やかである. また, 推定された値の相対誤差の絶対値は, 0.6 % よりも大きい. 特に,  $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  については, 2 % よりも大きな値である. **Figure 3.10 (b)** に示すように,  $\nu = 5$  s の  $k = 0$  での評価関数  $J(\mathbf{w}_k)$  は,  $\nu = 1$  s の場合の 5 分の 1 程度である. これは,  $\nu = 5$  s では観測データの数が  $\nu = 1$  s と比較して少ないことに起因する. 初期の  $J(\mathbf{w}_k)$  の減少は, 初期推定値の変化の大きさや,  $J(\mathbf{w}_k)$  の最小化反復計算 1 回あたりの変化量を減少させる. その結果, 材料パラメータの推定値が真値へ十分に近づかなくなるため, 推定精度が低下する.

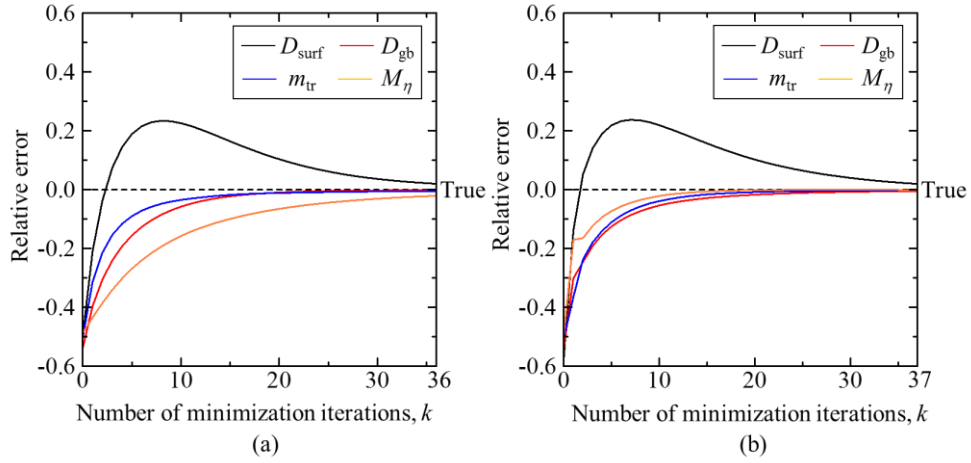




**Fig. 3.10** (a) Relative errors between the true and estimated values of  $D_{\text{surf}}$ ,  $D_{\text{gb}}$ ,  $m_{\text{tr}}$ , and  $M_{\eta}$  as functions of the number of minimization iterations of the cost function,  $k$ . The parameter estimation is performed with the ensemble members generated using the means and SDs in Table 5. The time interval of the observation data is  $\nu = 5$  s. (b) Comparison of the cost function,  $J(\mathbf{w}_k)$ , between  $\nu = 1$  and 5 s.

3.5 節で述べたように,  $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  の初期推定値の標準偏差を, **Table 3.5** に示す値よりもさらに大きく設定すれば, 大きな  $\nu$  を使用した場合の推定精度が改善されることが予想できる. また,  $\nu = 5$  で推定精度が減少した原因は, データ同化に用いる観測データの総数が減少したことであると考えられる. そこで, 以下では次の 2 つの条件で双子実験を行い, 材料パラメータの推定精度を検証する. **Case 1** では, **Table 3.5** に示す値よりもさらに大きな標準偏差を使用する. 試行錯誤によって,  $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  の初期推定値の標準偏差を,  $4.00 \times 10^{-13}$  m<sup>2</sup>/s および  $2.50 \times 10^{-8}$  m<sup>3</sup>/(J·s) にそれぞれ増加させる. **Case 2** では,  $\nu = 5$  s かつ  $t_{\text{end}} = 100$  s の条件で双子実験を行う. この条件でデータ同化に使用される観測データの数は,  $\nu = 1$  s かつ  $t_{\text{end}} = 20$  s の場合と等しい. **Case 2** では, 初期推定値の設定は **Table 3.5** に示される値を使用する. **Figure 3.11** に, **Case 1, 2** から得られる材料パラメータの推定値と真値の相対誤差の推移をそれぞれ示す. **Case 1** では,  $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  については真値との相対誤差が 1 % 未満で,  $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  については 2 % 未満で推定された. この **Case 1** の結果から, 高精度な材料パラメータ推定は, 観測データの時間間隔が大きな場合でも, 初期推定値の標準偏差を調整することで実現可能であると結論付ける.

**Case 2** でも, **Case 1** と同様に  $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  については真値との相対誤差が 1 % 未満,  $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  については 2 % 未満で推定された. 開発した En4DVar-PF モデルは, 観測時間間隔が固相焼結プロセスの全観測時間の 5 % 以内であれば, 材料パラメータを高精度に推定できることを示す. さらに, 本節の結果から, 実験において数秒程度の短い時間間隔で観測データを得ることができない場合でも, En4DVar-PF モデルを用いれば, 複数の材料パラメータを同時かつ高精度に推定できることが実証された.



**Fig. 3.11** Relative errors between the true and estimated values of  $D_{\text{surf}}$ ,  $D_{\text{gb}}$ ,  $m_{\text{tr}}$ , and  $M_{\eta}$  as functions of the number of minimization iterations of the cost function,  $k$ , for (a) case 1 and (b) case 2. The SDs of  $D_{\text{surf}}$  and  $M_{\eta}$  used to generate the ensemble members are (a)  $4.00 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$  and  $2.50 \times 10^{-8} \text{ m}^3/(\text{J}\cdot\text{s})$ , respectively, and (b) the same as those in **Table 3.5**. The time interval of the observational data is  $\nu = 5$  s for the (a) 20 s and (b) 100 s simulations.



### 3.7 結言

本章では、固相焼結 PF シミュレーションに En4DVar を適用することで開発した En4DVar-PF モデルを使用することで、焼結体の状態と複数の材料パラメータを同時に推定する手法を開発した。双子実験による En4DVar-PF モデルの検証を通じて、開発した En4DVar-PF モデルが、粒子形状と粒界分布の状態と、 $D_{\text{surf}}$ ,  $D_{\text{gb}}$ ,  $m_{\text{tr}}$ ,  $M_{\eta}$  の 4 種類の材料パラメータを同時かつ高精度に推定可能であることを実証した。さらに、双子実験により、状態と材料パラメータを高精度に推定するための適切な条件を明らかにした。以下に得られた知見を示す。

- 1) En4DVar-PF モデルを用いた推定に要するアンサンブルメンバーの数、つまりアンサンブルサイズは、材料パラメータ推定の結果がアンサンブルメンバーに依存しないように決定する必要がある。本章で行った双子実験の結果は、固体焼結の材料パラメータを推定するためのアンサンブルサイズは 50 が妥当であることを示した。
- 2) 材料パラメータの推定精度は、初期推定値を決定するために使用するガウス分布の標準偏差に影響を受ける。したがって、この標準偏差を最適な値に調整することが、En4DVar-PF モデルを使用して高精度な材料パラメータ推定を実現するために重要である。 $D_{\text{gb}}$  と  $m_{\text{tr}}$  のように、値が僅かに変化するだけで固相焼結シミュレーション結果を大きく変化させる材料パラメータよりも、 $D_{\text{surf}}$  と  $M_{\eta}$  のような、僅かな値の変動ではシミュレーション結果に大きな変化をもたらさない材料パラメータについての標準偏差を大きく設定することを推奨する。
- 3) 観測データの時間間隔が増加すると、材料パラメータ推定の精度は低下する。しかしながら、初期推定値を決定する際に使用する標準偏差を調整することや、十分な量の観測データを用意することで、高精度な材料パラメータ推定が可能となることを明らかにした。観測データの時間間隔が、固相焼結プロセスの全観測時間の 5%以内であれば、高精度にパラメータを推定することができる。

本章で示した結果は、En4DVar-PF モデルが固相焼結における観測不可能な状態を明らかにし、測定が困難な材料パラメータを推定するポテンシャルを有することを示している。近年では、実験技術の発展により、焼結中のマイクロ組織変化をその場観察することが可能となりつつある。それゆえ、En4DVar-PF モデルを使用して、Fig. 1.1 に示したような実際の実験データを使用したデータ同化に取り組むことで、焼結組織や材料特性の正確な予測や、焼結現象のさらなる解明をもたらすだろう。

## 第 4 章

### ベイズ最適化を利用した

### 新しいデータ同化手法の開発

#### 4.1 緒言

前章では、アンサンブル 4 次元変分法 (En4DVar) と固相焼結フェーズフィールド (PF) シミュレーションを組み合わせた En4DVar-PF モデルを使用することで、焼結材料の状態と材料パラメータを高精度に推定可能であることを明らかにした。しかしながら、En4DVar-PF モデルで使用する En4DVar は、確率密度関数 (PDF) をアンサンブル近似するため、推定を開始する以前に多数の固相焼結 PF シミュレーションを行う必要があり、計算コストが大きい。また、3.3 節で示したように、En4DVar を用いた状態推定と未知の材料パラメータの推定の精度は、アンサンブルメンバーの数に依存する。

そこで本研究では、より計算コストの低いデータ同化手法として、ベイズ最適化 (BO) 応用する DMC-BO を開発した。本章では、開発した DMC-BO を固相焼結 PF モデルに実装し、双子実験を行うことで、DMC-BO による状態推定や材料パラメータの推定の精度と計算コストを検証する。DMC-BO を用いた状態推定と材料パラメータ推定の精度と計算コストを、既存の非逐次データ同化手法との比較を通じて定量的に明らかにするため、3 章の En4DVar-PF モデルを使用した双子実験も DMC-BO の双子実験と同様の条件で行う。DMC-BO を用いた場合と En4DVar-PF モデルでの、それぞれの双子実験結果を比較することで、低計算コストでの状態推定と材料パラメータ推定の実現に対する DMC-BO の有効性を示す。

#### 4.2 非逐次データ同化へのベイズ最適化の応用

時刻  $t = 0$  から  $t = t_{\text{end}}$  における固相焼結過程の PF シミュレーションに 4DVar を適用することを考える。任意の時刻  $t$  ( $0 \leq t \leq t_{\text{end}}$ ) における、シミュレーションで得られる計算領域内のすべての状態変数と推定する材料パラメータを含んだ拡大状態ベクトル  $\mathbf{x}_t$  と、実験データによって構成される観測ベクトル  $\mathbf{y}_t$  とのデータミスフィットの大きさを表す評価関数は、最尤推定法に基づき次式で計算される。(詳細な導出は 2.3.4 項に示した)。

$$J(\mathbf{x}_0) = \frac{1}{2}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \frac{1}{2}(\mathbf{H}_t(\mathbf{x}_t) - \mathbf{y}_t)^T \mathbf{R}_t^{-1}(\mathbf{H}_t(\mathbf{x}_t) - \mathbf{y}_t) \quad (4.1)$$

従来の 4DVar では、評価関数  $J(\mathbf{x}_0)$  の勾配  $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  ( $= \partial J(\mathbf{x}_0) / \partial \mathbf{x}_0$ ) を使用し、変分法に基づき  $J(\mathbf{x}_0)$  を

最小化する.  $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  は次式で表される.

$$\nabla J(\mathbf{x}_0) = \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} (\mathbf{H}_t \mathbf{M}_{t-1} \mathbf{M}_{t-2} \dots \mathbf{M}_0)^T \mathbf{R}_t^{-1} (\mathbf{H}_t(\mathbf{x}_t) - \mathbf{y}_t) \quad (4.2)$$

ここで,  $\mathbf{H}_t$  と  $\mathbf{M}_t$  はそれぞれ観測演算子  $H_t$  とモデル演算子  $M$  の接線形演算子モデルであり, 次式で表される.

$$\mathbf{H}_t = \frac{\partial H_t(\mathbf{x}_t)}{\partial \mathbf{x}_t} \quad (4.3)$$

$$\mathbf{M}_t = \frac{\partial M(\mathbf{x}_t)}{\partial \mathbf{x}_t} \quad (4.4)$$

$\mathbf{H}_t^T$  と  $\mathbf{M}_t^T$  はアジョイント演算子と呼ばれる.  $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  はアジョイントモデルを計算することで導出されるため, 4DVar はアジョイント法とも呼ばれる.  $\nabla J(\mathbf{x}_0)$  を計算するためには,  $\mathbf{M}_t$  を計算しなければならない. しかしながら, 本研究で用いる固相焼結の PF モデルを含めて, 多くの PF モデルの時間発展方程式は非線形の偏微分方程式であるため,  $\mathbf{M}_t$  を解析的に導出するには高度な数学的知識や技術を必要とする. 加えて, PF モデルをわずかでも変更すると, アジョイントモデルの再計算が必要となる.

前章で使用した En4DVar [105, 106] は, アンサンブル近似を用いることで, アジョイントモデルを計算することなく評価関数の勾配を計算可能とした. 一方で, 評価関数の勾配を必要としない最適化手法を使用して  $J(\mathbf{x}_0)$  を最小化できれば, アンサンブル近似とアジョイントモデルのいずれもが不要で,  $\mathbf{x}_0$  を推定することが可能となる.

本章で開発する新しいデータ同化手法は, 評価関数  $J(\mathbf{x}_0)$  の最小化計算に BO を用いる. BO を用いた最適化では, 評価関数の勾配の計算を必要としないため,  $\mathbf{M}_t$  の解析的な計算や, アンサンブル近似が不要である. この新しい手法の名前である DMC-BO は「ベイズ最適化を使用して 4 次元の評価関数を最小化するデータ同化手法 (Data assimilation method Minimizing a four-dimensional Cost function using Bayesian Optimization)」という意味で名付けられた.

DMC-BO は, シミュレーションの初期状態を表す拡大状態ベクトル  $\mathbf{x}_0$  を入力, 式(4.1)で計算される  $J(\mathbf{x}_0)$  を出力と設定し, BO を用いて反復計算により  $J(\mathbf{x}_0)$  を最小化する. 2.4 節の BO の説明に沿えば,  $\mathbf{x}_{\text{BO}} = \mathbf{x}_0$ ,  $y_{\text{BO}} = J(\mathbf{x}_0)$  である. **Figure 4.1** に, DMC-BO を用いて最適な拡大状態ベクトル  $\mathbf{x}_0^b$  を推定する計算のフローチャートを示す. 2.4.3 項に示した一般的な BO の手順と概ね同一であるが, **Fig. 4.1** の Step 2 において, 背景状態ベクトル  $\mathbf{x}_0^b$  を生成する処理が新たに含まれる. また, DMC-BO では  $J(\mathbf{x}_0(i))$  ( $i = 1, 2, \dots, n$ , ここで  $n$  は蓄積データ数) を計算するためには,  $\mathbf{x}_0(i)$  を初期条件とした PF シミュレーションを時刻  $t = 0$  から  $t = t_{\text{end}}$  まで行う必要がある. つまり, 蓄積データ数  $n$  は, 状態推定や材料パラメータの推定のために行う PF シミュレーションの実行回数と等しい. また, 本研究では Step 8 において,  $n$  が既定の数  $n_{\text{end}}$  に到達したときを BO の反復計算の終了条件とする.

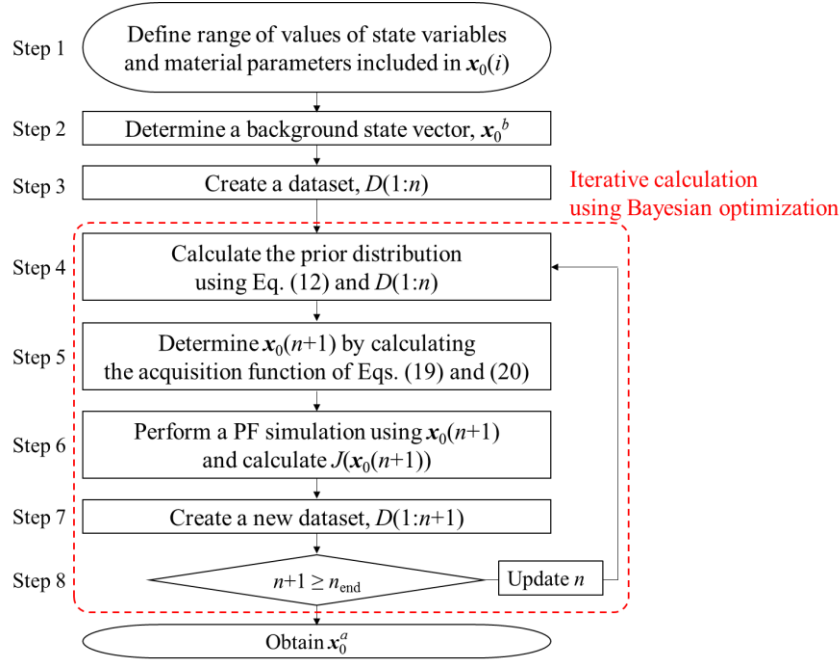


Fig. 4.1 Flowchart for estimating the optimal state vector,  $x_0^a$ , using DMC-BO.

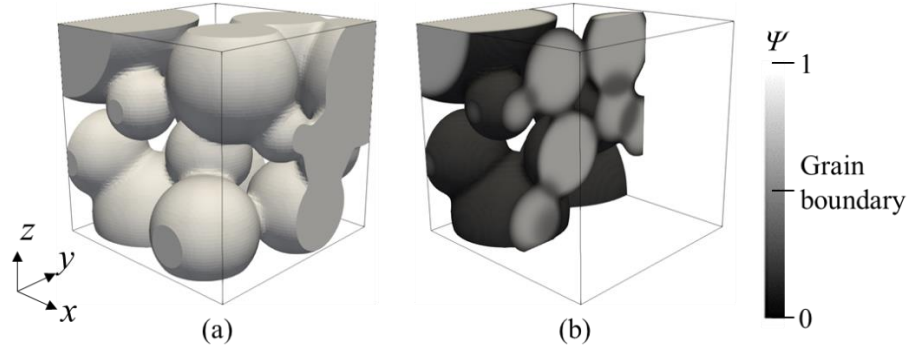
### 4.3 双子実験の条件

DMC-BO を用いた、状態推定および未知の材料パラメータ推定の精度を検証するとともに、推定に要する計算コストを調査するために、固相焼結 PF シミュレーションをベンチマーク問題として双子実験を行う。3 章と同じく、固相焼結の実験観察では粒子の形状のみが得られると想定し、真と仮定した初期状態と材料パラメータを使用した固相焼結 PF シミュレーションで得られた時系列の 3 次元の  $\rho$  の分布のみを疑似観測データとする。そして、真と仮定した初期状態と材料パラメータを、DMC-BO により推定された初期状態と材料パラメータ、すなわち  $x_0^a$  と比較することで、DMC-BO による状態推定と材料パラメータ推定の精度を検証する。また、DMC-BO の計算コストは、精度の高い推定結果が得られた時点の蓄積データ数  $n$  と、その時点までの経過時間を明らかにすることで調査される。

DMC-BO による状態推定やパラメータ推定の精度と計算コストを、既存の DA 手法のそれらと比較するために、En4DVar を用いて固相焼結の状態や材料パラメータを推定する双子実験も実施する。3 章と同じく本研究の双子実験においては、焼結開始時の粒子分布と粒界分布は DMC-BO と En4DVar のいずれを用いる場合でも既知であることを仮定する。また、推定する材料パラメータは、3 章と同じ 4 種類の材料パラメータ  $D_{surf}$ ,  $D_{gb}$ ,  $m_{ir}$ ,  $M_{\eta}$  とする。

Figure 4.2 に、双子実験で用いる粒子と粒界の初期分布を示す。計算領域は 1 辺  $12.8 \mu\text{m}$  の立方体である。有限差分格子の間隔は  $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 0.2 \mu\text{m}$  とする。拡散界面の幅は  $\delta = 3\Delta x$  とする。初期状態として、16 個の球形状の銀粒子が計算領域に配置する。粒界は、式(3.5)で定義した  $\eta_i$  の二乗和  $\Psi$  によって表す。  $\Psi = 0.5$  が粒界を表す。境界条件は全ての面に零ノイマン条

件を適用する. PF シミュレーションの時間増分は $\Delta t = 0.1 \text{ ms}$  である.  $2 \times 10^5 \text{ step}$  の計算を行い, 20 s 間の固相焼結シミュレーションを行う.



**Fig. 4.2** Initial distributions of silver particles and grain boundaries used for PF simulations of the solid-state sintering. The region of  $\rho > 0.5$  is shown in (a). The region of  $x \leq 6.4 \text{ }\mu\text{m}$  in (a) colored according to the sum of the orientation,  $\Psi$ , is shown in (b). (b) also shows the distribution of  $\Psi$  over the cross-section at  $x = 6.4 \text{ }\mu\text{m}$ .  $\Psi = 0.5$  corresponds to the grain boundary.

焼結温度は  $600^\circ\text{C}$  で一定であるとする [187]. 本章では, 固相焼結 PF モデルの勾配エネルギー係数は,  $\kappa_\rho = 3/4 \cdot (2\gamma_s - \gamma_{gb}) \delta$ ,  $\kappa_\eta = 3/4 \gamma_{gb} \delta$  と定義する [44, 125]. 表面エネルギーは  $\gamma_s = 1.21 \text{ J/m}^2$  [82], 粒界エネルギーは  $\gamma_{gb} = 0.79 \text{ J/m}^2$  [83] とする. 銀のモル体積は  $V_m = 10.27 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}$  である [78]. 銀の体積拡散係数  $D_{\text{vol}}$  は文献 [79] から計算された値であり,  $3.00 \times 10^{-16} \text{ m}^2/\text{s}$  である. 銀の気相中の拡散係数は不明であるため, 表面拡散や粒界拡散よりも十分に小さい値であると仮定する.

拡大状態ベクトル  $\mathbf{x}_t$  と観測ベクトル  $\mathbf{y}_t$  の定義は, 3 章と等しく,  $\mathbf{x}_t$  については次式で定義する.

$$\mathbf{x}_t = [\boldsymbol{\rho}_t \ \boldsymbol{\eta}_t \ D_{\text{surf}} \ D_{\text{gb}} \ m_{\text{tr}} \ M_\eta]^T \quad (4.5)$$

ここで,  $\boldsymbol{\rho}_t$  と  $\boldsymbol{\eta}_t$  は, それぞれ時刻  $t$  におけるすべての有限差分格子点での状態変数  $\rho$  と  $\eta_i$  で構成されるベクトルである.  $\mathbf{y}_t$  は次式で定義する.

$$\mathbf{y}_t = [\boldsymbol{\rho}'_t]^T \quad (4.6)$$

本章でも, 観測点の位置は有限差分格子点の位置と同じであることを仮定する. したがって,  $\boldsymbol{\rho}'_t$  は疑似観測データの, すべての有限差分格子点での  $\rho$  で構成されるベクトルである. また, 観測演算子  $H_t$  を  $\mathbf{x}_t$  に作用させた後のベクトルは次式で表される.

$$H_t(\mathbf{x}_t) = [\boldsymbol{\rho}_t]^T \quad (4.7)$$

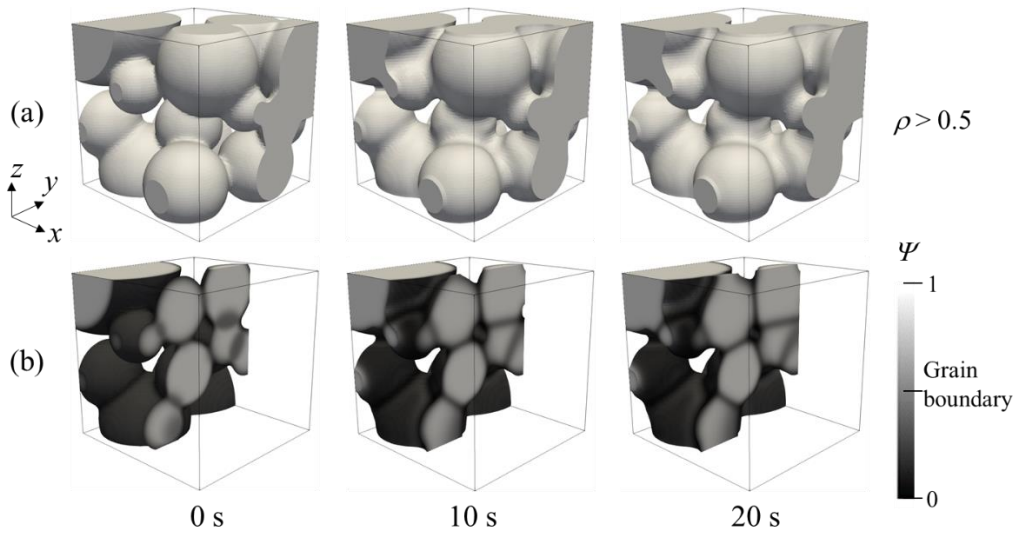
焼結開始時の粒子分布と粒界分布は既知であることを仮定するため, DMC-BO によって最適化される状態ベクトル  $\mathbf{x}_0(i)$  は, 推定する 4 種類の材料パラメータ  $D_{\text{surf}}(i)$ ,  $D_{\text{gb}}(i)$ ,  $m_{\text{tr}}(i)$  and  $M_\eta(i)$

のみによって構成される.

$$\mathbf{x}_0(i) = [D_{\text{surf}}(i) D_{\text{gb}}(i) m_{\text{tr}}(i) M_{\eta}(i)]^T \quad (4.8)$$

推定する 4 種類の材料パラメータの仮定した真値,  $D_{\text{surf}}^{\text{true}}$ ,  $D_{\text{gb}}^{\text{true}}$ ,  $m_{\text{tr}}^{\text{true}}$ ,  $M_{\eta}^{\text{true}}$  も 3 章と等しく,  $D_{\text{surf}}^{\text{true}} = 1.47 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  [80],  $D_{\text{gb}}^{\text{true}} = 1.28 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  [81],  $m_{\text{tr}}^{\text{true}} = 1.00 \times 10^{-10} \text{ m}^5/(\text{J}\cdot\text{s})$ ,  $M_{\eta}^{\text{true}} = 2.00 \times 10^{-7} \text{ m}^3/(\text{J}\cdot\text{s})$  とする.

**Figure. 4.3** に, 上述の材料パラメータの真値を用いた PF シミュレーション結果を示す. この結果から, 20 s 間の固相焼結により, 銀粒子間でのネック成長や粒界移動, 粒成長が生じることがわかる. この結果のうち, **Fig. 4.3 (a)**に示す $\rho$ の 3 次元分布のみを疑似観測データとして用いる. 疑似観測データの時間間隔 $\nu$ は 1 s とし, 0 s から 20 s まで 21 個のデータを取得する.  $\nu = 1 \text{ s}$  は, 一般的な実験で取得可能な観測データの時間間隔よりも短い [115, 119] が, 本章では DMC-BO の状態や未知パラメータの推定精度や計算コストを, En4DVar との比較により検証することが目的であるため, 3 章において En4DVar による高精度な状態や材料パラメータの推定が可能であることが示されている $\nu = 1 \text{ s}$ を用いる.



**Fig. 4.3** Snapshots of the a priori assumed-true state obtained by the PF simulation using the true values in **Table 3.2**. The region of  $\rho > 0.5$  is shown in (a), and the region of  $x \leq 6.4 \mu\text{m}$  in (a) colored according to the sum of the orientation,  $\Psi$ , is shown in (b). (b) also shows the distribution of  $\Psi$  over the cross-section at  $x = 6.4 \mu\text{m}$ .  $\Psi = 0.5$  corresponds to grain boundaries. The evolution of  $\rho$  shown in (a) is used as the synthetic observational data for twin experiments.

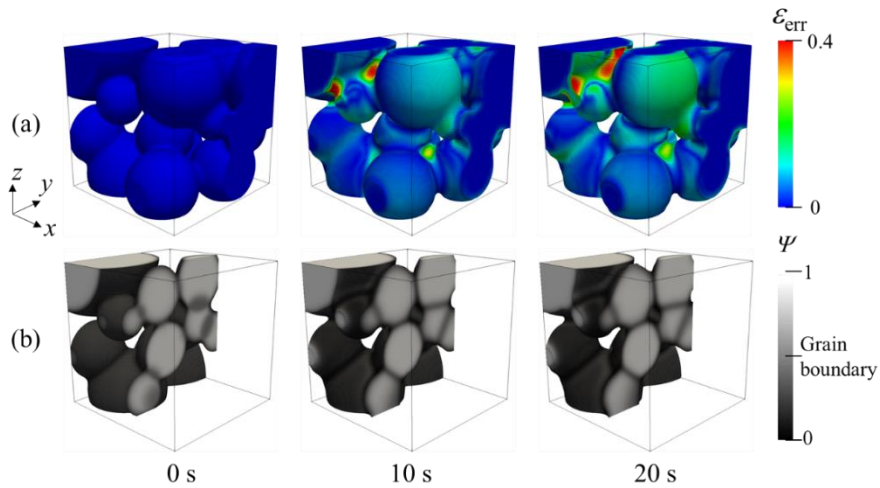
**Table 4.1** に, 背景状態ベクトル $\mathbf{x}_0^b$ に含まれる材料パラメータの, 初期推定値  $Y(1)$  ( $Y = D_{\text{surf}}, D_{\text{gb}}, m_{\text{tr}}, M_{\eta}$ )と, 初期推定値が持つ不確実性を表現するためのガウス分布を定義する, 誤差の標準偏差 $\sigma^b(Y)$ を示す. 初期推定値は任意の値を設定することができるが, 本研究で推定する材料パラメータは値が大きいと計算の数値的な発散を招くため, それぞれの材料パラメータの  $Y(1)$ は仮定した真値の半分程度とする.  $\sigma^b(Y)$ は, 3.5 節において状態と材料パラメータが高

精度に推定できることが示された値と等しい。

**Table 4.1** Means and standard deviations (SDs) of Gaussian distribution used to determine the initially estimated parameters.

Parameter, $Y$	$D_{\text{surf}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$D_{\text{gb}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$m_{\text{tr}}$ [ $\text{m}^5/(\text{J}\cdot\text{s})$ ]	$M_{\eta}$ [ $\text{m}^3/(\text{J}\cdot\text{s})$ ]
Mean of initially estimated parameters, $Y(1)$	$7.00 \times 10^{-13}$	$6.00 \times 10^{-11}$	$5.00 \times 10^{-11}$	$1.00 \times 10^{-7}$
SD of error included in initially estimated parameters, $\sigma^b(Y)$	$3.50 \times 10^{-14}$	$6.00 \times 10^{-12}$	$5.00 \times 10^{-12}$	$2.00 \times 10^{-8}$

DMC-BO によるデータ同化を行わず、初期推定値をそのまま用いた PF シミュレーションの結果が疑似観測データとどの程度乖離するかを示すため、**Fig. 4.4** に初期推定値を用いた PF シミュレーション結果を示す。ここで **Fig. 4.4 (a)**では、疑似観測データとシミュレーション結果の差を示すために、誤差の絶対値  $\varepsilon_{\text{err}} = |\rho_{\text{est}} - \rho_{\text{true}}|$  を用いて粒子を色付けする。ここで、 $\rho_{\text{true}}$  は  $y_i$  に含まれる各有限差分格子点の密度場、 $\rho_{\text{est}}$  は DMC-BO を用いて得られる  $\mathbf{x}_i$  に含まれる各有限差分格子点の密度場である。DMC-BO を行わない PF シミュレーション結果は、特にネック部で疑似観測データと大きな差がある。また、並進運動モビリティ  $m_{\text{tr}}$  の初期推定値は、仮定した真値よりも小さく設定したため、シミュレーション結果に表れる粒子の並進運動による移動量は疑似観測データよりも小さく、その結果として粒子表面でも大きな  $\varepsilon_{\text{err}}$  を示す。



**Fig. 4.4** Snapshots of the initially estimated state obtained by the PF simulation using the initially estimated parameters. The region of  $\rho > 0.5$  colored according to the absolute error,  $\varepsilon_{\text{err}} = |\rho_{\text{est}} - \rho_{\text{true}}|$ , is shown in (a), and the region of  $x \leq 6.4 \mu\text{m}$  in (a) colored according to the sum of the orientation,  $\Psi$ , is shown in (b). (b) also shows the distribution of  $\Psi$  over the cross-section at  $x = 6.4 \mu\text{m}$ .  $\Psi = 0.5$  corresponds to the grain boundary region.



焼結開始時の粒子分布と粒界分布が既知である仮定の下で、本章では背景誤差共分散行列を  $\mathbf{B} = \text{diag}(0, 0, \dots, 0, (\sigma^b(D_{\text{surf}}))^2, (\sigma^b(D_{\text{gb}}))^2, (\sigma^b(m_{\text{tr}}))^2, (\sigma^b(M_{\eta}))^2)$  と定義する。また、観測誤差共分散行列は  $\mathbf{R}_i = \sigma^2 \mathbf{I}_R$  と定義され、本章では  $\sigma = 0.1$  とする。

**Figure 4.1** の Step 1 で示すように、DMC-BO では、 $\mathbf{x}_0(i)$  に含まれる 4 種類の材料パラメータ  $D_{\text{surf}}(i)$ ,  $D_{\text{gb}}(i)$ ,  $m_{\text{tr}}(i)$ ,  $M_{\eta}(i)$  が最適化の過程でとりうる値の範囲を決定することが必要である。これらの値の範囲は任意に決定することができるが、前述のように、大きすぎる拡散係数やモビリティは数値的発散の原因となる。そのため、値の範囲は試行錯誤により、 $0 \text{ m}^2/\text{s} \leq D_{\text{surf}} \leq 3 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $0 \text{ m}^2/\text{s} \leq D_{\text{gb}} \leq 2 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $0 \text{ m}^5/(\text{J}\cdot\text{s}) \leq m_{\text{tr}} \leq 2 \times 10^{-10} \text{ m}^5/(\text{J}\cdot\text{s})$ ,  $0 \text{ m}^3/(\text{J}\cdot\text{s}) \leq M_{\eta} \leq 3 \times 10^{-7} \text{ m}^3/(\text{J}\cdot\text{s})$  と決定した。

さらに、Step 3 において最初のデータセット  $D(1:n)$  を作成する際は、 $n = 5$  とする。 $D(1:n)$  に含まれる  $\mathbf{x}_0(i)$  ( $1 \leq i \leq 5$ ) は、 $\mathbf{x}_0(1) = \mathbf{x}_0^b$  とする。一方、 $\mathbf{x}_0(2)$  から  $\mathbf{x}_0(5)$  は、4 種類の材料パラメータ  $D_{\text{surf}}(i)$ ,  $D_{\text{gb}}(i)$ ,  $m_{\text{tr}}(i)$  and  $M_{\eta}(i)$  を上記の範囲内でランダムに決定する。したがって、Step 3 までに必要となる PF シミュレーションの実施回数は 5 回である。一方 En4DVar では、評価関数を最小化する反復の前に、アンサンブルサイズ  $N_e$  と同じ回数の PF シミュレーションを行う必要がある。3.5 節の結果から、固相焼結 PF シミュレーションでは  $N_e \geq 50$  が望ましい。そのため、DMC-BO を用いることで、En4DVar の 10 分の 1 の計算コストで Step 4 から 7 の反復計算を開始できる。

3.5 節の結果から、En4DVar を使用した場合には、評価関数を最小化する反復計算の回数が 100 回までに、状態と未知の材料パラメータが高精度に推定された。そのため、**Fig 4.1** に示す Step 8 の終了条件は、 $n_{\text{end}} = 100$  とする。

BO ではガウス過程回帰 (GPR) や獲得関数の計算が必要となるが、これらの計算を容易に可能な BO 用の Python ライブラリが提供されている。このライブラリを使用することで、多くの場合でアジョイントモデルを計算するよりも容易に BO を行うことができる。本研究では、DMC-BO のアルゴリズムで行われる GPR と BO の計算は、それぞれ GPy (version 1.9.9) [191] と GPyOpt (version 1.2.6) [192] ライブラリを用いて行う。GPyOpt ライブラリによって、式(4.1)から得られる評価関数  $J(\mathbf{x}_0(i))$  は平均 0, 標準偏差が 1 となるように正規化される。また、本研究では  $\mathbf{x}_0(i)$  に含まれる各材料パラメータのオーダーが小さいため、GPR や獲得関数の計算では、各材料パラメータを最小 0, 最大 1 となるように正規化する。**Algorithm 1** に、双子実験を行い DMC-BO の推定精度や計算コストを検証するための疑似コードを示す。PF シミュレーションのためのプログラムを、計算速度に優れた Fortran や C などの言語で別に作成し、Python のプログラムからサブプロセスで実行すれば、DMC-BO のための Python コードはわずか 120 行程度となる。したがって、DMC-BO は、容易に PF モデルへ実装することが可能である。



---

**Algorithm 1** Four-dimensional variational method coupled with Bayesian optimization (BO)

---

Import GPyOpt

**Input:** observational data  $y_i$

$n_{\text{end}} = 100$

Set ranges of the parameters to be estimated

$\mathbf{x}_0^b \leftarrow$  initial distribution of  $\rho$  and  $\eta_i$ , and parameters of  $D_{\text{surf}}(1)$ ,  $D_{\text{gb}}(1)$ ,  $m_{\text{tr}}(1)$  and  $M_{\eta}(1)$

$\mathbf{B} = \text{diag}(0, 0, \dots, 0, (\sigma^b(D_{\text{surf}}))^2, (\sigma^b(D_{\text{gb}}))^2, (\sigma^b(m_{\text{tr}}))^2, (\sigma^b(M_{\eta}))^2)$

$\mathbf{R}_i = \sigma^2 \mathbf{I}$

Select conditions for BO such as acquisition function and kernel function

**for**  $i = 1$  **to** 5 **do**

**if**  $i = 1$  **then**

$\mathbf{x}_0(i) = [D_{\text{surf}}(1) \ D_{\text{gb}}(1) \ m_{\text{tr}}(1) \ M_{\eta}(1)]$

**else**

$D_{\text{surf}}(i)$ ,  $D_{\text{gb}}(i)$ ,  $m_{\text{tr}}(i)$ ,  $M_{\eta}(i)$  are randomly determined within their predefined ranges

$\mathbf{x}_0(i) = [D_{\text{surf}}(i) \ D_{\text{gb}}(i) \ m_{\text{tr}}(i) \ M_{\eta}(i)]$

**end if**

  Perform a PF simulation of solid-state sintering using  $\mathbf{x}_0(i)$

  Calculate cost function  $J(\mathbf{x}_0(i))$  by Eq. (4.1)

**end for**

$D(1:5) = \{\mathbf{x}_0(1:5), \mathbf{J}(1:5)\}$

**for**  $n = 5$  **to** ( $n_{\text{end}} - 1$ ) **do**

  Obtain  $\mathbf{x}_0(n+1)$  by BO using GPyOpt library and dataset,  $D(1:n)$

  Perform a PF simulation of solid-state sintering using  $\mathbf{x}_0(n+1)$

  Calculate cost function  $J(\mathbf{x}_0(n+1))$  by Eq. (4.1)

$D(1:n+1) \leftarrow \mathbf{x}_0(1:n+1)$  and  $\mathbf{J}(1:n+1)$

**end for**

**Return:**  $\mathbf{x}_0^a \leftarrow \mathbf{x}_0^{\min} = \mathbf{x}_0(i)$  which minimize the cost function,  $J(\mathbf{x}_0(i))$  ( $1 \leq i \leq n_{\text{end}}$ )

---

#### 4.4 活用戦略と探索戦略のトレードオフが推定結果におよぼす影響調査

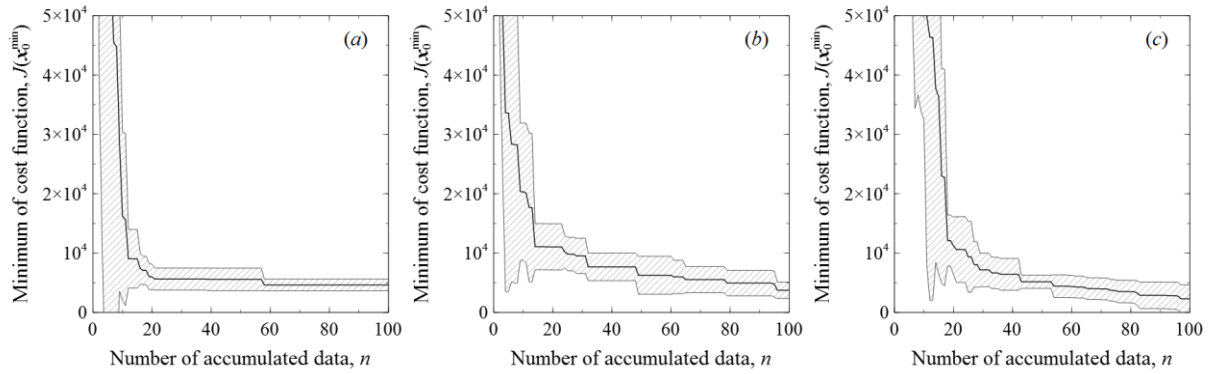
DMC-BO において評価関数を最小化するために必要な反復計算の回数は、EI 獲得関数で使用する場合は、活用戦略と探索戦略のトレードオフを決定するハイパーパラメータ $\xi$ に依存する（詳細は 2.4.2 節で述べた）。先行研究 [62] では、BO の目的関数から返される出力を正規化する場合、 $\xi = 0.01$  とすれば活用戦略と探索戦略がバランスよく行われ、種々の最適化問題に対して良い結果をもたらすと報告されている。しかしながら、DMC-BO を用いて少ない計算コストで高精度に状態推定や材料パラメータ推定を行うために最適な $\xi$ は不明である。したがって本節では、活用戦略と探索戦略のトレードオフの設定が、DMC-BO による状態推定や材料パラメータ推定の精度と計算コストに及ぼす影響を調査する。そして、DMC-BO を固相焼結 PF シミュレーションにおいて、状態推定や材料パラメータを推定する場合に最適な $\xi$ を決定する。

活用戦略と探索戦略のトレードオフの設定による、DMC-BO を使用した状態推定と材料パラメータ推定の精度と計算コストを調査するために、 $\xi = 0.1, 0.01, 0.001$  の 3 通りで双子実験を行う。BO で行う GPR に用いる初期データセットはランダムに作成するため、それぞれの $\xi$ に対して 5 回ずつ双子実験を行い、反復計算過程で得られた評価関数の最小値の平均と標準偏差の推移を評価する。

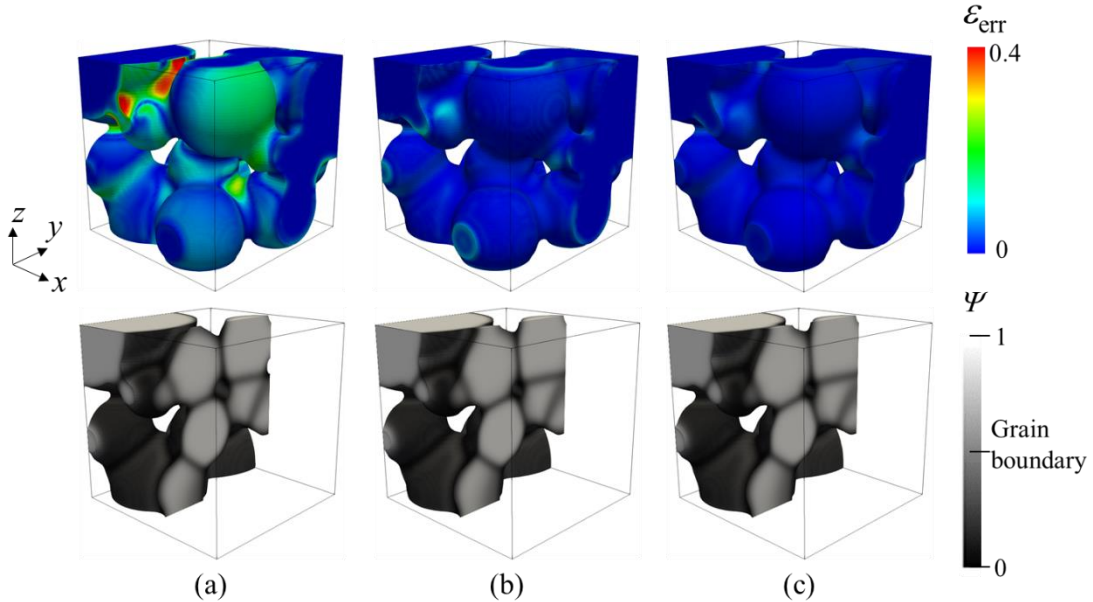
Figure 4.5 に、蓄積データ数  $n$  に対する評価関数の最小値  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  の平均と標準偏差の推移を示す。 $n=1$  での  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  は、背景状態ベクトル  $\mathbf{x}_0^b$  を用いて計算される  $J(\mathbf{x}_0^b)$  と等しい。 $\mathbf{x}_0^b$  を固相焼結 PF シミュレーションの初期条件として使用した状態推定結果は Fig. 4.4 に示した通りであり、このとき  $J(\mathbf{x}_0^b) \approx 2.5 \times 10^5$  である。 $\mathbf{x}_0^b$  は全ての双子実験で同じであるため、 $n=1$  の標準偏差は 0 である。 $2 \leq n \leq 5$  では、 $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  はランダムに決定した  $\mathbf{x}_0(i)$  の返り値  $J(\mathbf{x}_0(i))$  から得られる。そのため、この範囲では標準偏差は大きい。 $n \geq 6$  が DMC-BO による評価関数の最小化反復から得られた結果である。

$J(\mathbf{x}_0^{\min})$  の平均の推移に着目すると、 $\xi = 0.1$  の場合、つまり獲得関数において探索戦略を重視する場合には  $n \geq 20$  で  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  が顕著に減少しなくなるのに対し、 $\xi = 0.01, 0.001$  では  $n = 100$  まで  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  が減少を続ける。この傾向は $\xi$ が小さいほど、すなわち獲得関数が活用戦略を重視するほど強い。一方で、 $n = 20$  での  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  の平均値を比較すると、 $\xi = 0.1$  の結果は、 $\xi = 0.01, 0.001$  の結果よりも小さい。ここで、Fig. 4.6 に、 $t = 20$  s 時点の (a) 初期推定の状態 ( $J(\mathbf{x}_0^{\min}) \approx 2.5 \times 10^5$ )、(b)  $n = 20$  での  $\xi = 0.01$  の状態推定結果 ( $J(\mathbf{x}_0^{\min}) \approx 1 \times 10^4$ )、(c)  $n = 20$  での  $\xi = 0.1$  の状態推定結果 ( $J(\mathbf{x}_0^{\min}) \approx 5 \times 10^3$ ) を示す。Fig. 4.6 (a) と比較し、Fig. 4.6 の (b) と (c) では、疑似観測データと推定された状態の差は減少する。特に Fig. 4.6 (c) で状態の差は小さく、焼結体の状態が高精度に推定された。この結果は、 $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  が  $5 \times 10^3$  程度まで減少すれば、高い精度で 20 s の固相焼結後の焼結体の状態が推定されることを表す。したがって、少ない計算コストで精度の良い状態推定や材料パラメータ推定を行うためには、 $\xi > 0.01$  として探索戦略を重視すればよい。一方で、より高精度な推定結果を得るためには、 $\xi < 0.01$  として活用戦略を重視すればよい。活用戦略を重視すれば、計算回数が増えるほど高精度な推定結果が得られる。

$J(\mathbf{x}_0^{\min})$ の標準偏差に着目すると、いずれの $\xi$ でも  $n=20$  までで標準偏差は  $5 \times 10^3$  以下となる。この結果は、 $\xi$ の値にかかわらず、DMC-BO による状態推定や材料パラメータ推定の精度や、推定に要する計算コストは、使用するデータセットに強く依存しないことを意味する。 $n = 20$  時点の標準偏差の大きさを比較すると、 $\xi$ が大きく探索戦略を重視するほど、 $J(\mathbf{x}_0^{\min})$ の標準偏差は小さいことから、推定精度や計算コストの、BO に使用するデータセットへの依存性は、探索戦略を重視するほど減少することがわかる。



**Fig. 4.5** Transitions of the means and standard deviations of the minimum of the cost function,  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$ , obtained from results of five twin experiments for  $\xi =$  (a) 0.1, (b) 0.01, and (c) 0.001.



**Fig. 4.6** Comparison between the (a) initially estimated states ( $J(\mathbf{x}_0) \approx 2.5 \times 10^5$ ), (b) estimated states for  $n = 20$  and  $\xi = 0.01$  ( $J(\mathbf{x}_0) \approx 1 \times 10^4$ ), and (c) estimated states for  $n = 20$  and  $\xi = 0.1$  ( $J(\mathbf{x}_0) \approx 5 \times 10^3$ ) at  $t = 20$  obtained by DMC-BO. The upper row shows the region of  $\rho > 0.5$  colored according to the error,  $\epsilon_{\text{err}}$ , calculated by Eq. (38). The lower row shows the grain boundary distributions at  $x \leq 6.4 \mu\text{m}$ .

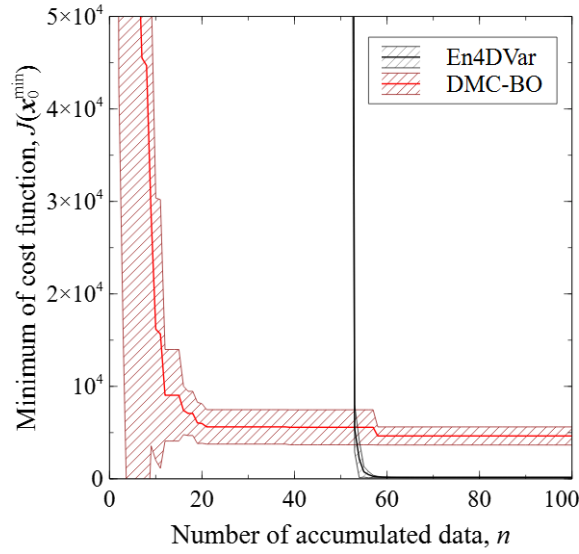
前述のように、探索戦略を重視すれば、少ない計算コストで精度の良い状態推定や材料パラメータ推定を行うことができる。しかしながら、過度に探索戦略を重視し、局所最適化が行われなくなることは、精度の良い推定結果を得るために必要な計算コストの増加を導く。 $\xi = 0.1$  であれば、Fig. 4.5 (a)の  $n = 10 \sim 20$  に示すような  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  の連続的な更新が生じる。これは、 $\xi = 0.1$  とすれば探索戦略を重視しつつ局所最適化も行われることを示唆する。したがって、次節に示す双子実験では、 $\xi = 0.1$  を使用する。

## 4.5 アンサンブル 4 次元変分法との推定結果の比較による

### 新データ手法の低い計算コストの実証

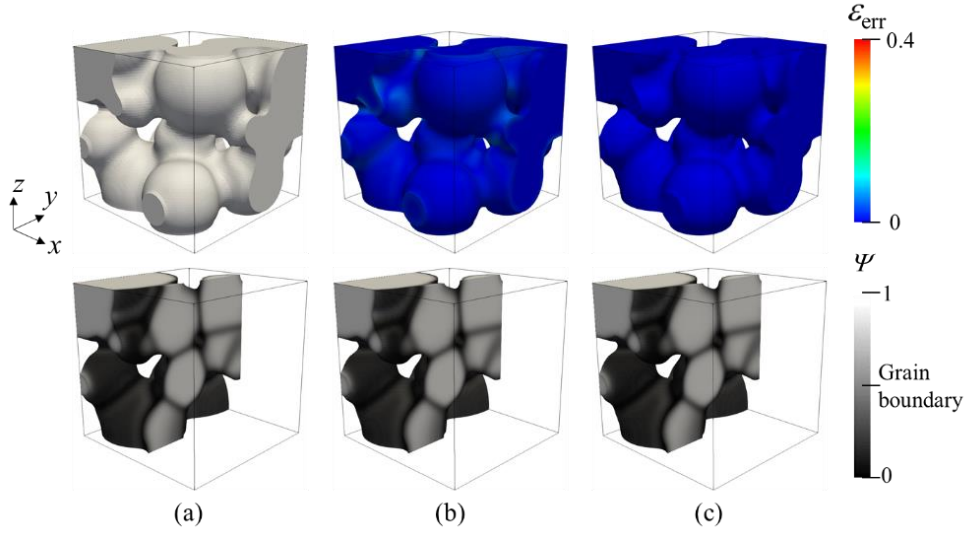
本節では、DMC-BO を用いた状態推定や材料パラメータの推定結果を、En4DVar を用いた推定結果と比較することで、DMC-BO の優れた推定精度と低い計算コストを実証する。En4DVar を用いた推定での、粒子の初期配置や物性値、パラメータは、4.3 節に示した DMC-BO を用いた推定の条件と同じである。アンサンブルサイズ  $N_e$  は、3 章で高い精度の推定結果が得られることが示された、50 とする。その他の En4DVar を用いた推定の条件も、3 章で示した条件と等しい。En4DVar を用いた状態推定および材料パラメータ推定は、DMC-BO と同じく同条件で 5 回行い、評価関数の反復計算過程から得られた評価関数の最小値の平均と標準偏差の推移を評価する。

Figure 4.7 に、DMC-BO と En4DVar それぞれを用いた双子実験から得られた、蓄積データ数  $n$  に対する評価関数の最小値  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  の平均値と標準偏差の推移を示す。En4DVar においては、 $n$  はアンサンブルメンバーの生成と評価関数の最小化のために行われる PF シミュレーションの実行回数と等しい。 $N_e = 50$  とする場合、En4DVar は  $n = 50$  まではアンサンブルメンバーの生成のための計算が行われるため、 $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  が得られない。対して、DMC-BO は前節で述べたように、 $n = 20$  時点で高精度な状態推定が可能である。この結果は、DMC-BO を用いれば En4DVar の半分以下の計算コストで状態推定が可能であることを表す。



**Fig. 4.7** Transitions of the means and standard deviations of the minimum of the cost function,  $J(\mathbf{x}_0^{\min})$  obtained by DMC-BO and En4DVar. The means and standard deviations for DMC-BO and En4DVar are calculated from 5 and 3 twin experiments, respectively.

Figure 4.8 (a)に,  $t = 20$  s での疑似観測データを示し, Fig. 4.8 (b)と(c)にはそれぞれ, 評価関数を最小化する反復計算を 15 回行った後, すなわち DMC-BO では  $n = 20$ , En4DVar では  $n = 65$  時点で得られた, 状態推定の結果を示す. DMC-BO と En4DVar のいずれにおいても, 粒子分布と粒界分布が高精度に推定された. Table 4.2 に, Fig. 4.8 (b)と(c)に示した状態が得られた  $n$  での, 各パラメータの推定された値の平均値と標準偏差を示す. En4DVar は全てのパラメータを高精度に推定した. DMC-BO も全てのパラメータについて, 推定値の平均値と仮定した真値との相対誤差が, 大きくとも 7 %程度の精度で推定した. 推定値の標準偏差に着目すると, 仮定した真値との相対では,  $D_{gb}$  と  $m_{tr}$  の標準偏差が  $D_{surf}$  と  $M_{\eta}$  の標準偏差よりも小さい. 本研究で行う固相焼結 PF シミュレーションにおいては,  $D_{gb}$  と  $m_{tr}$  は  $D_{surf}$  と  $M_{\eta}$  と比較して状態の時間発展に強く影響するパラメータである. この結果から, 状態変化に強く影響するパラメータについては, DMC-BO を用いて高精度かつばらつきの少ない推定結果が得られることが明らかとなった. また, DMC-BO を用いて  $n = 20$  の推定結果を得るために要する時間は, 7.8 時間であるのに対し, En4DVar で同等の推定結果が得られる  $n = 53$  までの計算時間は 24.4 時間である. したがって, 本章で行う固相焼結 PF シミュレーションを対象にデータ同化を行う場合には, DMC-BO を使用することで, En4DVar を使用する場合から 16 時間以上の計算時間を削減することができる.



**Fig. 4.8** Comparison at  $t = 20$  between the (a) a priori assumed-true states, (b) estimated states at  $n = 20$  obtained by DMC-BO and (c) estimated states at  $n = 65$  obtained by En4DVar. The upper row shows the region of  $\rho > 0.5$  colored by the error,  $\epsilon_{\text{err}}$  calculated by Eq. (38). The lower row shows the grain boundary distributions at  $x \leq 3.2 \mu\text{m}$ .

**Table 4.2** Means and standard deviations of estimated parameters for DMC-BO and En4DVar obtained after 15 iterative calculations to minimize the cost function.

Parameter	$D_{\text{surf}} (\times 10^{-12})$ [m <sup>2</sup> /s]	$D_{\text{gb}} (\times 10^{-10})$ [m <sup>2</sup> /s]	$m_{\text{tr}} (\times 10^{-10})$ [m <sup>5</sup> /(J·s)]	$M_{\eta} (\times 10^{-7})$ [m <sup>3</sup> /(J·s)]
True value	1.47	1.28	1.00	2.00
Estimated value by DMC-BO ( $n = 20$ )	$1.51 \pm 0.67$	$1.37 \pm 0.11$	$1.06 \pm 0.08$	$1.94 \pm 0.44$
Estimated value by En4DVar ( $n = 65$ )	$1.47 \pm 0.00$	$1.28 \pm 0.00$	$1.00 \pm 0.00$	$2.00 \pm 0.00$

## 4.6 結言

本研究では、新たなデータ同化手法として DMC-BO を開発した。DMC-BO は 4DVar の評価関数の最小化に BO を使用することにより、評価関数の勾配を計算する必要なしに、複数の物性値やパラメータを同時に推定することができる。従来の 4DVar を PF モデルに実装する場合は、評価関数の勾配を計算するために、解析的な導出が困難な PF シミュレーションモデルの adjoint モデルの計算が必要であった。DMC-BO はこの計算が不要となるため、PF モデルへの実装が容易である。さらに、EnKF や En4DVar のように PDF をアンサンブル近似する必要が無いため、DMC-BO の推定精度や計算コストはアンサンブルサイズに依存しない。

本章では、DMC-BO を用いた状態やパラメータの推定精度と計算コストを検証するために、固相焼結の PF モデルに DMC-BO を実装して双子実験を行った。双子実験の結果、DMC-BO は少ない計算コストで状態とパラメータの推定が可能であることが示された。双子実験から得られた、より詳細な知見を以下に示す。

- 1) DMC-BO の、状態推定と材料パラメータ推定の精度や、推定に要する計算コストは、獲得関数の活用戦略と探索戦略のトレードオフに依存する。探索戦略を重視することで、小さな計算コストで妥当な精度の推定結果が得られることを実証した。また、高精度な推定結果を得るためには、活用戦略を重視するべきである。
- 2) DMC-BO を用いて得られた状態推定と材料パラメータ推定の精度と計算コストは、活用戦略と探索戦略のトレードオフに関わらず、事前分布の計算に用いたデータセットに強く依存しない。特に、推定結果のデータセットへの依存性は、探索戦略を重視するほど減少する。
- 3)  $\xi = 0.1$  を用いた DMC-BO は、小さな計算コストで高精度に状態推定が可能である。状態推定に必要な計算コストは、従来手法の En4Var と比較して半分以下であった。
- 4) 材料パラメータ推定では、推定値の平均値と事前に仮定した真値との相対誤差は 7 % 以下であった。この材料パラメータの推定結果は、推定された材料パラメータを用いて粒子形状や粒界分布を予測する上で、妥当な精度である。特に状態の時間発展に強く影響する  $D_{gb}$  や  $m_{tr}$  については、不確実性が低く、かつ高い精度で推定された。

本章では DMC-BO の適用例として固相焼結の PF シミュレーションを選択したが、DMC-BO はあらゆる PF シミュレーションに対して適用が可能である。数値計算モデルへの実装が容易な DMC-BO は、少ない計算コストで妥当な推定結果をもたらす強力な手法である。DMC-BO は、これまで未解明であった組織変化や材料パラメータに対して、複雑なプログラミングや膨大な計算資源無しに解明と予測の術を与えうるという点で、材料科学・工学分野に大きなインパクトを与えるものである。

## 第 5 章

# 新開発のマルチフェーズフィールドモデルを用いたエレクトロマイグレーションによるボイド移動シミュレーション

### 5.1 緒言

本研究では、多結晶配線内のエレクトロマイグレーション (EM) によるボイド移動とマイクロ組織変化を統一解析可能な、マルチフェーズフィールド (MPF) モデルを新しく開発した。本章では、開発した MPF モデルを使用した数値シミュレーションを行う。MPF モデルを使用してバンブー構造を有する多結晶銅配線内のボイド移動解析を行うことにより、ボイドが粒界と接触した際のボイドの体積変化や粒界の形状変化を明らかにする。加えて、パラメトリックスタディにより、ボイドの成長による配線の断線のカギとなる因子を特定する。さらに、ボイドの体積変化により生じる配線の断線位置について、MPF シミュレーション結果と先行研究で観察された結果を比較することで、本研究で開発した MPF モデルが、実際の配線における EM による断線位置予測に有効であることを示す。

### 5.2 数値シミュレーション条件

**Table 5.1** に、本章で実施するシミュレーションに用いる物性値およびパラメータを示す。ボイド表面の原子の拡散層厚さ  $\delta_s$  は、粒界の原子の拡散層厚さ  $\delta_{gb}$  と等しいと仮定する。加えて、ボイド内部の導電率  $\zeta_{void}^*$  は、銅の導電率  $\zeta_{Cu}^*$  と比較して十分に小さい値として仮定する。銅の有効電荷数の大きさは、5 程度であることが報告されている [168, 193]。しかしながら、ボイド表面の銅の有効電荷数を  $Z_s^* = 5$  とした場合の数値シミュレーションでは、ボイドの移動速度が遅く、ボイド移動の計算に膨大な時間が必要となる。そのため本章では、少ない計算時間でボイドの移動を表現するために、 $Z_s^*$  には大きな値を使用してボイドの移動速度を高速化する。



**Table 5.1** Physical values and parameters used in this study.

Parameters	Values	Reference
Volume of an atom, $\Omega$	$8.78 \times 10^{-30} \text{ m}^3$	[194]
Charge of an electron, $e$	$1.60 \times 10^{-19} \text{ C}$	
Boltzmann constant, $k_B$	$1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$	
Applied current density, $i$	$2 \text{ MA/cm}^2$	[195]
Temperature, $T$	$573 \text{ K}$	[195]
Thickness of the diffusion layer on the void surface, $\delta_s$	$0.5 \text{ nm}$	
Thickness of the diffusion layer on the grain boundary, $\delta_{gb}$	$0.5 \text{ nm}$	[76]
Electrical conductivity of copper, $\zeta_{\text{Cu}}^*$	$5.92 \times 10^7 \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$	[195]
Electrical conductivity of a void, $\zeta_{\text{void}}^*$	$5 \times 10^{-15} \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$	
Parameter controlling the thickness of the interfacial layer, $\epsilon$	$6.4 \text{ nm}$	[160]
The spacing of the computational grid, $\Delta x, \Delta y, \Delta z$	$2 \text{ nm}$	
Time increment, $\Delta t$	$5.0 \mu\text{s}$	

最適な $Z_s^*$ を決定するために、以下に示す無次元パラメータを考える [151, 152, 196-198].

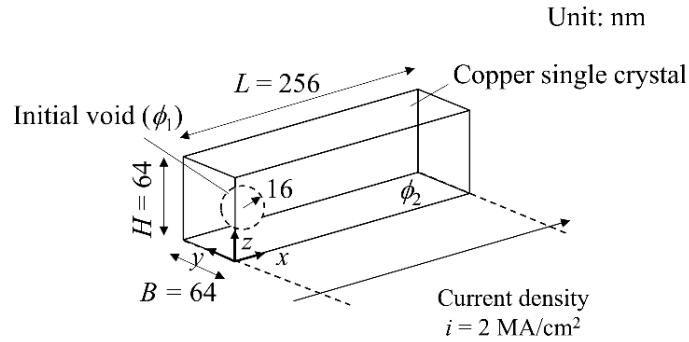
$$\chi = \frac{E_\infty |e| Z_s^* r^2}{\Omega \gamma_s} \quad (5.1)$$

ここで、 $\chi$ はボイドの表面エネルギーによる駆動力と EM による駆動力の比を表す。 $r$ はボイドの半径であり、 $E_\infty$ はボイドから無限に離れた場所での配線内の電場の大きさである。 $\chi$ が小さいとボイドは円形状を保ち、 $\chi$ の値が大きいとボイドはスリット状に分裂する [151, 197].  $Z_s^* = 5$  と **Table 5.1** に示すパラメータを用いて計算される $\chi$ は小さな値となるため、 $Z_s^* = 5$  の条件でのボイド移動 3 次元 MPF シミュレーションを行うと、ボイドは球形状を保って移動する。したがって、本章ではボイドが球形状を保って移動する範囲で大きな $Z_s^*$ を定め、その値は 500 とする。また、粒界での銅の有効電荷数 $Z_{gb}^*$ の設定値は、以降の節で実施するシミュレーションごとに示す。

また、計算時間を短縮するために、MPF モデルを用いたボイド移動シミュレーションは、MPI ライブラリと OpenMP ライブラリを用いた複数 CPU による並列計算で行う。

### 5.3 マルチフェーズフィールドモデルの妥当性評価

本研究で構築した MPF モデルの妥当性検証のために、単結晶銅配線内を移動する 3 次元のボイドの移動速度について、解析解と MPF シミュレーションから得られる数値解を比較する。解析解は Ho [175] によつての提案された理論式から算出する。Figure 5.1 に、MPF シミュレーションに使用する計算領域を示す。計算領域は、 $256 \times 64 \times 64 \text{ nm}^3$  とし、多くの先行研究 [148-154, 156-163] と同様に球形状の初期ボイドを配置する。初期ボイドは、半径が  $r = 16 \text{ nm}$  であり、中心座標が  $(x, y, z) = (64 \text{ nm}, 32 \text{ nm}, 32 \text{ nm})$  である。ボイドの表面エネルギーは  $\gamma_s = 0.6 \text{ J/m}^2$  [163]、ボイド表面拡散の振動数項および活性化エネルギーはそれぞれ、 $D_s^0 = 5.2 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$  [195] と  $Q_s = 0.95 \text{ eV}$  [140] とする。その他の物性値とパラメータは Table 5.1 に示されている。電流は配線の長手方向に印加され、電位は、電流の入口と出口となる面でそれぞれ一定とする。その他の面には、零ノイマン境界条件を適用する。また、PF 変数  $\phi$  については、計算領域のすべての面で零ノイマン条件とする。初期状態の電位分布は、配線内にボイドを配置後、 $Z_s^* = 0$  の条件で緩和計算することで決定する。



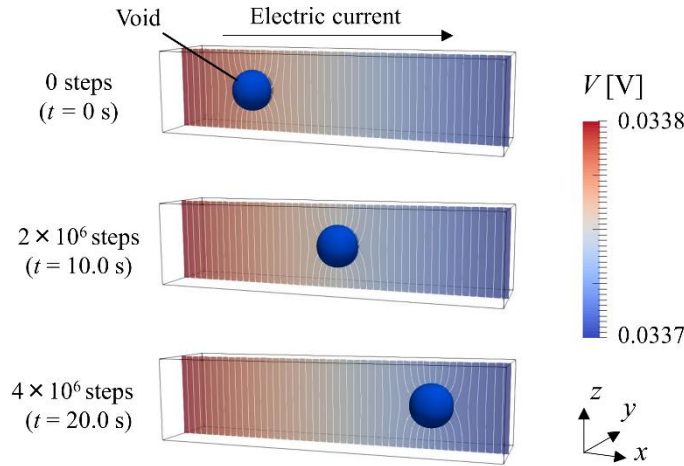
**Fig. 5.1** Three-dimensional computational domain used to simulate the migration of a spherical void in a copper single crystal interconnect line.

Figure 5.2 に、MPF シミュレーションによつて得られた EM によるボイド移動を示す。ボイドは、電流方向と同じ方向に球形状を保つて移動する。このシミュレーション結果から、ボイドの移動速度の数値解  $v_{\text{num}}$  が  $v_{\text{num}} = 6.93 \text{ nm/s}$  と得られる。一方、単結晶配線における球形ボイドの移動速度の解析解  $v_{\text{ana}}$  は、次式に示す Ho の式 [175] を用いて計算する。

$$v_{\text{ana}} = \frac{3D_s^0 \delta_s \exp(-Q_s / k_B T)}{k_B T} \left( \frac{|e| Z_s^* E_\infty}{r} \right) \quad (5.2)$$

式(5.2)に、Table 5.1 に示した物性値およびパラメータを代入すると、 $v_{\text{ana}} = 7.36 \text{ nm/s}$  である。したがって、ボイドの移動速度の解析解は、MPF シミュレーションで予測された数値解よりも 5.85 % 大きい。Bhate [160] らによれば、単結晶配線を移動する円形のボイドの速度は、拡散界面の幅が大きいほど速く、解析解と数値解の差は最大で 19.9 % まで上昇する。また、Bhate らは、拡散界面の幅が円形ボイドの半径の 60 % の場合、解析解と数値解の差は 6 % 以内に収ま

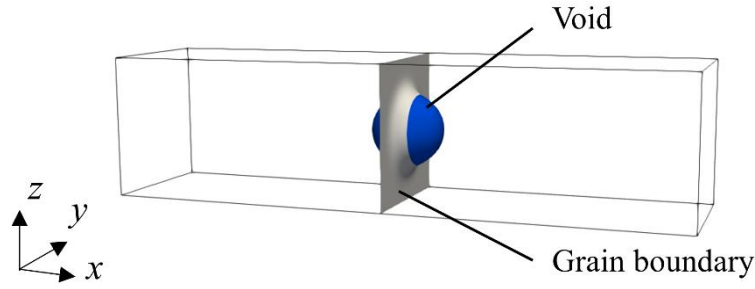
ると報告した. 一方で本研究の結果は, 拡散界面の幅を  $\epsilon\pi/2 \approx 10$  nm, 球形状ボイドの半径を  $r = 16$  nm とした. この条件では, 拡散界面の幅はボイドの半径の 62.5% である. それにもかかわらず, 本研究で得られた解析値と数値解の差は 6 % 以内である. この結果は, 本研究で提案した MPF モデルの精度が, Bhate らが提案したモデルと同等であることを示す.



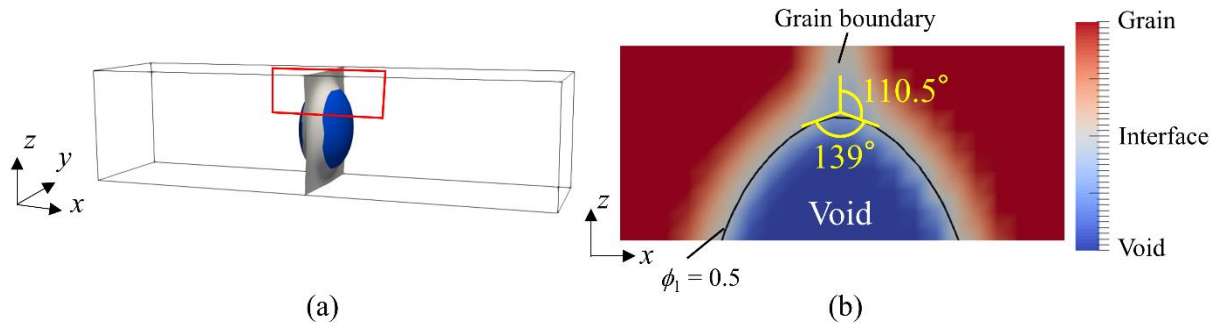
**Fig. 5.2** Snapshots of a migrating void in a copper single crystal interconnect line. The void isosurface for which  $\phi_1 = 0.5$  is shown in blue. The color contour indicates the distribution of the electric potential over the cross-section at  $y = 32$  nm and the solid white solid lines indicate equipotentials.

また, 別の観点から MPF モデルを検証するために, 電流密度を印加せず, ボイドが粒界に固定された状態での, ボイドの形状変化を解析する. 粒界とボイド表面で構成される 3 重点での 2 面角が, Young の式 [199] で計算される角度と一致することを調査した. **Figure. 5.3** に, ボイドと粒界の初期状態を示す. シミュレーションに用いる粒界の物性値は, 粒界エネルギーが  $\gamma_{gb} = 0.42$  J/m<sup>2</sup> [163], 粒界拡散の振動数項と活性化エネルギーがそれぞれ,  $D_{gb}^0 = 2.3 \times 10^{-6}$  m<sup>2</sup>/s [198] と  $Q_{gb} = 0.90$  eV [195] とする. このシミュレーションでは, 粒界では原子流束が発生せず, ボイドの体積は一定であると仮定する.

**Figure. 5.4 (a)** に,  $10^7$  step の計算を行った後の, ボイドと粒界の 3 次元形状を示し. **Fig. 5.4 (b)** には  $y = 32$  nm 断面でのボイド表面と粒界の分布を示す. Young の式から計算される, ボイド表面間の 2 面角の解析解は  $139^\circ$  であり, ボイドと粒界の間の 2 面角の解析解は  $110.5^\circ$  である. **Fig. 5.4 (b)** に示されるように, ボイド表面は 3 重点において約  $139^\circ$  の角度を成す. この結果は, MPF モデルで計算されるシミュレーション結果から, 界面張力のバランスを満たす妥当な 2 面角を得られることを示す.



**Fig. 5.3** Initial distributions of a void and a grain boundary in a simulation for analyzing the morphological change of the void at the grain boundary without electric current. The blue and gray surfaces indicate the void surface and the grain boundary, respectively.



**Fig. 5.4** (a) Isosurfaces of a void and a grain boundary at  $10^7$  computational steps. (b) Distributions of the void and the grain boundary on the region of the cross-section at  $y = 32$  nm indicated by red frame in (a). Yellow lines show the analytical dihedral angle calculated by Young's equation.

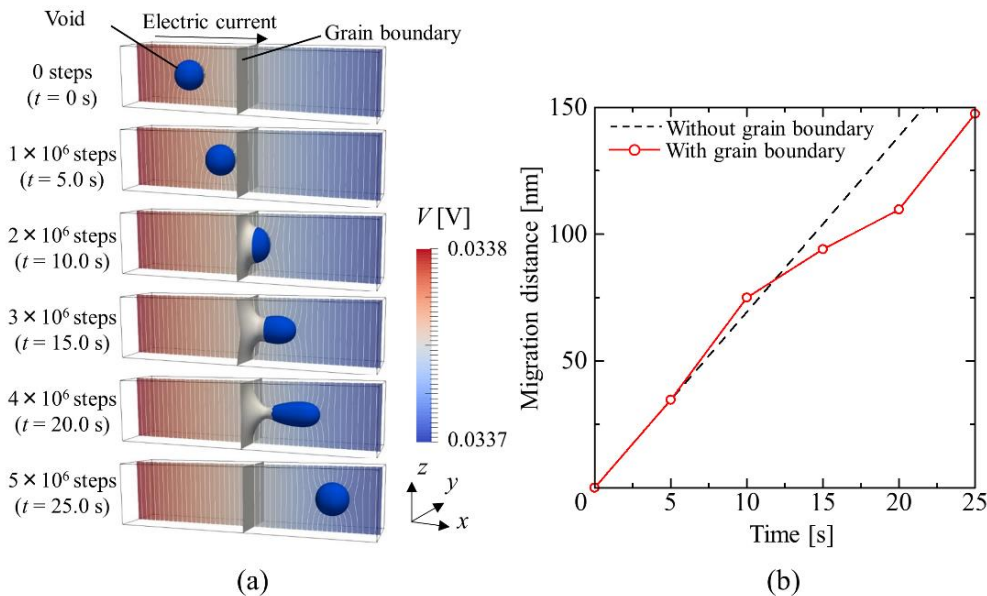
## 5.4 粒界通過時のボイドと多結晶組織の変化

MPF モデルを使用して、ボイドと粒界の相互作用を解析する。ここでは、バンブー構造を持つ銅配線において、球形状ボイドが粒界を通過する 3 次元シミュレーションを行う。MPF モデルを用いて予測した粒界の変形を、Barrett ら [162] が行った同様の 2 次元シミュレーションの結果と比較することで、多結晶配線を対象とした MPF シミュレーション結果の妥当性を評価する。Figure 5.1 に示した計算領域内の  $x = 128$  nm に、電流方向に対して垂直な粒界を設定する。このシミュレーションでは、粒界に沿った原子の流入と流出がない特殊な条件を仮定する。これにより、粒界を通過するボイドの体積は一定に保たれる。EM 誘起の原子流束による体積変化を無視したボイド移動シミュレーションを行うために、粒界における銅の有効電荷数を  $Z_{gb}^* = 0$  とする。その他のシミュレーション条件は、前節に示した条件と等しい。

Figure 5.5 (a)に、EM によって移動するボイドが粒界を通過する過程を示す。ボイドは粒界に近づくことで、互いに引き合うように変形する。これは、ボイドと粒界が接触すると、粒界の表面積が減少し、粒界エネルギーおよび系の全自由エネルギーが減少するためである。ま

た、上記の理由から、ボイドと粒界は接触した状態を保とうとする。粒界とボイド表面の3重点では、前節に示したように2面角で特定の角度を成す。そのため、ボイド表面や粒界を表す界面は、3重点においてこの角度を維持するように変形する。ボイドが粒界を通過した後の粒界は、計算開始時よりわずかに  $x$  軸方向に移動するが、粒界の形状は計算開始時と同じく電流方向に対し垂直な平面となる。これは、粒界が平面に近いほど、粒界の曲率に伴うエネルギーが減少するためである。このようなボイドが粒界を通過する過程における粒界の変形は、Barrett ら [162] の2次元シミュレーション結果と定性的に一致する。

**Figure 5.5 (b)**には、**Fig. 5.5 (a)**に示すバンブー銅配線内を移動するボイドと、単結晶銅配線内を移動するボイドについての、時間に対する移動距離を示す。図中の黒の破線と赤の実線の傾きがボイドの移動速度を表す。前述のように、ボイドは粒界と引き合うために、ボイドの移動速度は  $t = 10.0$  s においてわずかに加速した後、減速する。ボイドが粒界に近付くと、ボイドは進行方向に存在する粒界に引き寄せられることで加速する。逆にボイドが粒界から離れる際には、ボイドが粒界に移動方向とは逆方向に引き寄せられるため減速する。 $t = 20.0$  s以降の、ボイドと粒界が離れた後のボイドの移動速度は、単結晶配線内における移動速度と等しい。



**Fig. 5.5** (a) Snapshots of a migrating void and the interaction between the void and a grain boundary in a copper straight interconnect line with a bamboo structure. (b) Migration distance of a void as a function of time. The hollow circles indicate the migration distance of the void expressed in (a) and the red solid lines are simply linear connections between these points. The black dashed line indicates the migration velocity in the single crystal line.

## 5.5 粒界の物性値による粒界におけるボイドの体積変化の調査

粒界は EM による原子移動経路としての役割を持つ [153, 169] ため、ボイドが粒界に接触すると、EM 誘起の原子流束によってボイドの体積は変化する。粒界でのボイドの成長は配線の断線要因となるため、粒界と接触した際のボイドの体積変化を調査することは、配線寿命の延伸のために重要である。そこで本節では、配線の故障につながる致命的なボイド成長を生じさせる因子を解明するための、パラメトリックスタディを行う。

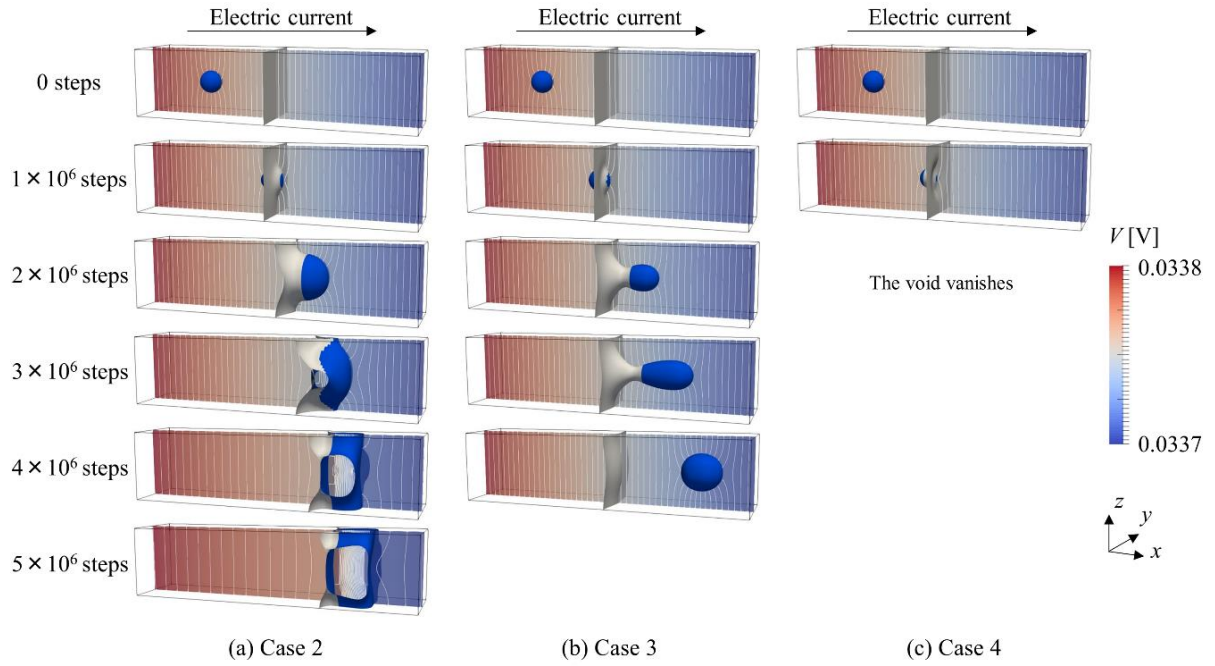
**Table 5.2** Physical values used in the 3D simulation of void migration in a straight bamboo copper line with eight different cases.

	$\gamma_s$ [J/m <sup>2</sup> ]	$\gamma_{gb}$ [J/m <sup>2</sup> ]	$D_s^0$ [m <sup>2</sup> /s]	$D_{gb}^0$ [m <sup>2</sup> /s]	$Q_s$ [eV]	$Q_{gb}$ [eV]	$D_{gb}/D_s$
Case 1	0.5	0.5	$5.2 \times 10^{-6}$	$5.2 \times 10^{-6}$	0.95	0.95	1.00
Case 2	0.5	0.5	$5.2 \times 10^{-6}$	$5.2 \times 10^{-6}$	0.95	0.90	2.75
Case 3	0.6	0.42	$5.2 \times 10^{-6}$	$5.2 \times 10^{-6}$	0.95	0.95	1.00
Case 4	0.5	0.5	$5.2 \times 10^{-6}$	$2.3 \times 10^{-6}$	0.95	0.95	0.44
Case 5	0.6	0.42	$5.2 \times 10^{-6}$	$5.2 \times 10^{-6}$	0.95	0.90	2.75
Case 6	0.5	0.5	$5.2 \times 10^{-6}$	$2.3 \times 10^{-6}$	0.95	0.90	1.22
Case 7	0.6	0.42	$5.2 \times 10^{-6}$	$2.3 \times 10^{-6}$	0.95	0.95	0.44
Case 8	0.6	0.42	$5.2 \times 10^{-6}$	$2.3 \times 10^{-6}$	0.95	0.90	1.22

単一のボイドと粒界を持つ直線のバンブー銅配線において、ボイドが移動し粒界で体積変化する 3 次元シミュレーションを、8 通りの条件で行う。それぞれの条件を **Table 5.2** に示す。ボイド表面と粒界の物性値は、異なる値を使用する場合には、5.3 節に示したものと同一値を使用する。ボイド表面と粒界で物性値が等しいことを仮定する場合には、表面エネルギー  $\gamma_s$  と粒界エネルギー  $\gamma_{gb}$  は、両者のおおよその中間値として  $\gamma_s = \gamma_{gb} = 0.5$  とし、拡散係数の振動数項および活性化エネルギーは、 $D_{gb}^0 = D_s^0, Q_{gb} = Q_s$  とする。**Table 5.2** に示す、ボイド表面の原子の拡散係数  $D_s$  と粒界の原子の拡散係数  $D_{gb}$  の比  $D_{gb}/D_s$  は、シミュレーション結果の評価のために使用する。球形状の初期ボイドの半径は、 $r = 10.7$  nm とする。粒界における銅の有効電荷数は  $Z_{gb}^* = Z_s^* = 500$  とする。その他のシミュレーション条件は前節と等しい。

**Figure 5.6** に、**Table 5.2** に示す Case 2, 3, 4 の条件から得られるボイド進展を示す。Case 2 では、粒界においてボイドが配線の幅方向に成長し、断線を引き起こす。Case 3 では、ボイドは粒界を通過し、通過後のボイドの体積は初期ボイドの体積と比較して大きい。Case 4 では、粒界においてボイドの体積が減少し、ボイドは消失する。





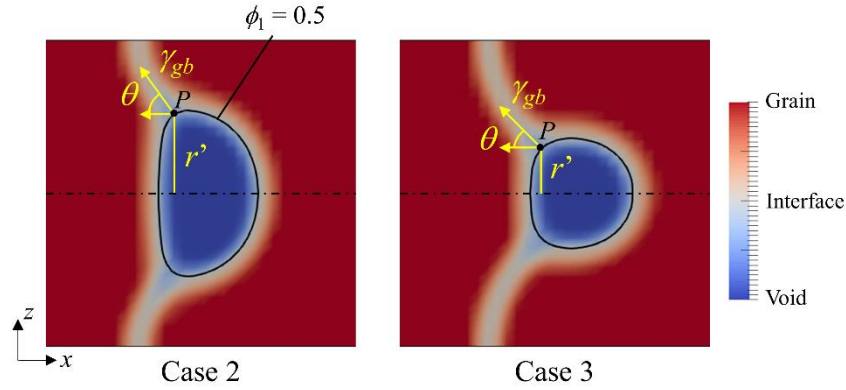
**Fig. 5.6** Snapshots of a migrating void and the interaction between the void and a grain boundary in a copper straight bamboo interconnect line for Cases 2 to 4. In Case 4, the void vanishes after  $1.1 \times 10^6$  computational steps. The blue and gray surfaces indicate the void surface and grain boundary, respectively. The color contour shows the distribution of the electric potential along the cross-section at  $y = 32$  nm, and the solid white lines are equipotentials.

ボイド移動の駆動力は Case 2 と Case 3 で同じであるにもかかわらず, Case 2 ではボイドが粒界に留まり, 一方 Case 3 ではボイドは粒界を通過した. そこで, Zener のピンニングモデル [200] に基づいて, ボイドが粒界を通過する条件を調査する. Zener のピンニングモデルは, 移動する粒界が静止した粒子に作用する際のピン止め力の解析に使用される. 本研究ではボイドが移動し, 粒界が静止するという真逆の関係ではあるが, 粒界とボイドの相対距離の変化は, 粒界とピン止め粒子の相対距離の変化と同じであると考えることができる. そこで, Zener モデルを用いて, ボイドに働くピン止め力を調査した. **Figure 5.7** に, Case 2 と Case 3 でそれぞれ  $1.5 \times 10^6$  step 計算を行った後に得られる,  $y = 32$  nm 断面のボイドと粒界を示す. 粒界でボイドを捕捉するピンニング力  $F_{\text{pin}}$  は次式で表される [200].

$$F_{\text{pin}} = 2\pi r' \gamma_{gb} \cos \theta \quad (5.3)$$

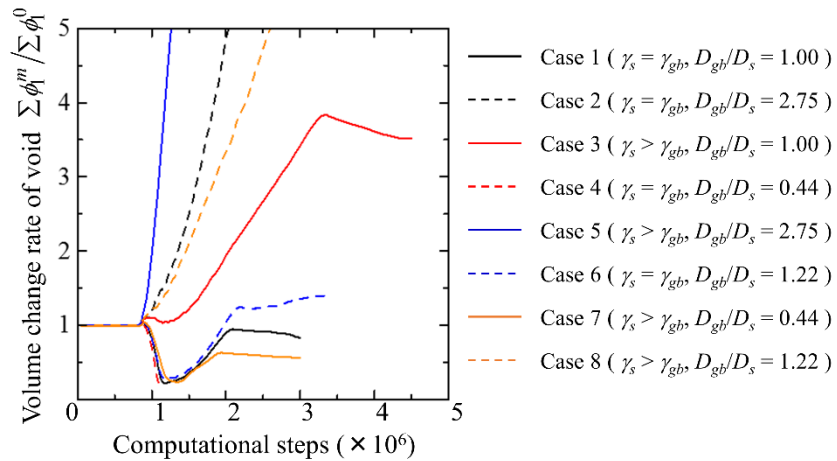
ここで,  $\theta$  は **Fig. 5.7** 内の点  $P$  に示されるような, ボイドと粒界での 3 重点における,  $\phi_1 = 0.5$  の等値面の法線方向とボイド移動方向の逆方向との間の角度である.  $r'$  は点  $P$  とボイドの  $z$  軸方向中心との距離である.  $1.5 \times 10^6$  step の時点では, Case 2 では  $F_{\text{pin}} = 2.95 \times 10^{-8}$  N であり, Case 3 では  $F_{\text{pin}} = 1.87 \times 10^{-8}$  N である. このピン止め力の差が, ボイドが粒界を通過するかどうかを決定する. さらに, 粒界に沿ってボイドが成長すると, 式(5.3)に示すように  $r'$  の増加に比例してピン止め力が増加するため, ボイドが粒界に留まることを明らかにした. 逆に, 粒界に沿

ってボイドが成長しない場合では、ボイドは粒界を通過すると予想できる。



**Fig. 5.7** Distributions of a void and a grain boundary along the cross-section at  $y = 32$  nm in Case 2 and 3 at  $1.5 \times 10^6$  computational steps.

**Figure 5.8** に、時間経過に伴うボイドの体積変化率を示す。ボイドの体積変化率は、計算開始前の $\phi_1$ の総和 $\sum \phi_1^0$ と、 $m$ 回目の計算 step における $\phi_1$ の総和 $\sum \phi_1^m$ の比  $\sum \phi_1^m / \sum \phi_1^0$  により算出する。Cases 1, 3, 6, 7 では、ボイドは粒界を通過する。一方で、Case 4 ではボイドは粒界で消失し、Case 2, 5, 8 では、ボイドは顕著に成長する。以下では、**Fig. 5.8** に示すようにボイドの体積変化が生じた要因を論ずる。



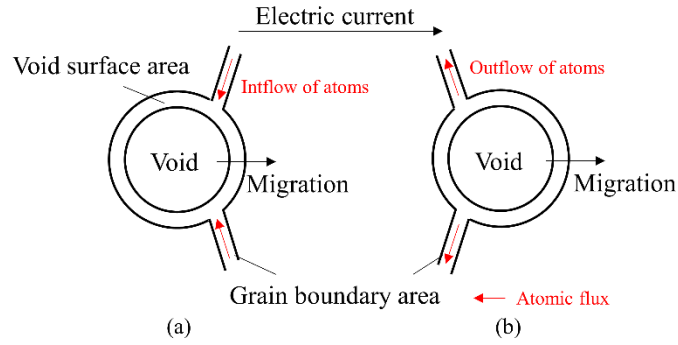
**Fig. 5.8** Volume change of a void as a function of the number of computational steps for the different conditions corresponding to Cases 1 to 8.

Case 1, 6, 7 では、ボイドが粒界に接触する  $9 \times 10^5$  step 以降でボイドの体積が減少し、その後増加に転じる。これは、**Fig. 5.9** (a)に示すように、ボイドが粒界に接触した際には、EM によって生じる原子流束  $J_{ij,EM}$  によって粒界からボイドに原子が流入するため、ボイドの体積が減

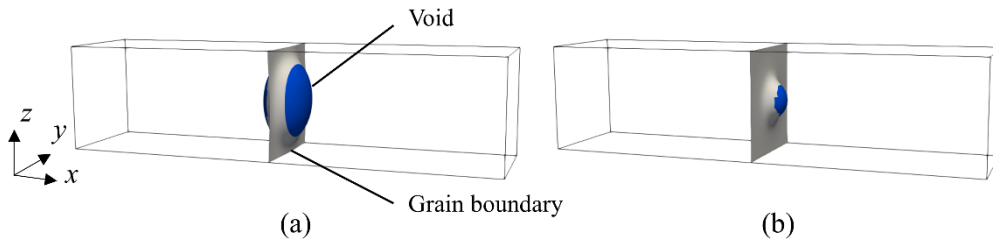


少する、逆に、ボイドが粒界から離れる過程では、**Fig. 5.9 (b)**に示すようにボイドから原子が流出することでボイドの体積が増加する。このことから、Case 4 では、多くの原子がボイドに流入したために、粒界でボイドが消失したと考えられる。Case 2, 3, 5, 8 では、 $9 \times 10^5$  step 以降、ボイドの体積が増加する。ここで **Table 5.2** の  $D_{gb}/D_s$  に着目する。体積が増大した Case では  $D_{gb}/D_s > 1$  または  $\gamma_s > \gamma_{gb}$  である。 $D_{gb}/D_s$  や、界面エネルギーである  $\gamma_s$  と  $\gamma_{gb}$  の相対的な差は、拡散流束  $J_{ij,diff}$  の大きさに寄与する。この流束は、ボイド表面と粒界の界面で発生し、ボイド表面から粒界への原子の移動を促す。

ここで、 $J_{ij,diff}$  のみの働きによるボイドの体積変化に対する、 $D_{gb}/D_s$  の効果を調査する。配線に電流を印加せず  $J_{ij,EM}$  が作用しない条件で、 $D_{gb}/D_s$  を 2.75 と 0.44 とした 2 通りのシミュレーションを実施する。このシミュレーションでは、表面エネルギー  $\gamma_s$  と粒界エネルギー  $\gamma_{gb}$  は等しいと仮定し、ボイドと粒界の初期状態は **Fig. 5.3** に示した状態と等しい。**Figure 5.10** に、 $5 \times 10^5$  step の計算後に得られるボイドと粒界の 3 次元形状を示す。 $D_{gb}/D_s = 2.75$  の場合は、ボイドは粒界に沿って成長する (**Fig. 5.10 (a)**)。一方で、 $D_{gb}/D_s = 0.44$  であれば、ボイドの体積は減少する (**Fig. 5.10 (b)**)。この結果は、EM 誘起の原子流束  $J_{ij,EM}$  がなくても、拡散流束  $J_{ij,diff}$  によって原子がボイドに出入りすることで、ボイドの体積が変化することを表している。 $D_{gb}/D_s > 1$  ではボイド体積は増加し、 $D_{gb}/D_s < 1$  ではボイドの体積が減少する。また、 $J_{ij,diff}$  によるボイドの成長は粒界に沿って生じるため、ボイドのピン止め力を増加させる。したがって、 $D_{gb}/D_s$  の値は、ボイドが粒界に接触した際の、ボイドが粒界で留まり成長するかどうかを判断する指標となる。本研究のパラメトリックスタディでは、Case 2, 5, 6, 8 が  $D_{gb}/D_s > 1$  である。実際にこれらの Case では、 $J_{ij,EM}$  による原子の流入によってボイドの体積が減少する Case 6 を除いて、ボイドが粒界に留まるシミュレーション結果が得られる。 $D_{gb}/D_s > 1$  の条件においては、 $J_{ij,EM}$  によるボイドへの原子の流入があっても、その流入量よりも  $J_{ij,diff}$  によるボイドからの原子の流出が多くなれば、ボイドの体積は増加する。また、ボイドが粒界に接触しており  $\gamma_s > \gamma_{gb}$  であれば、表面エネルギーの差によってボイド表面から粒界に向かって原子が拡散する方向に、 $J_{ij,diff}$  が発生する。以上の結果から、ボイドの成長は、 $D_{gb}/D_s$  の値と、 $\gamma_s$  と  $\gamma_{gb}$  の相対的な大きさの関係によって決定されることが明らかになった。具体的には、 $D_{gb}/D_s > 1$  もしくは  $\gamma_s > \gamma_{gb}$  の場合、ボイドの体積は増加する。

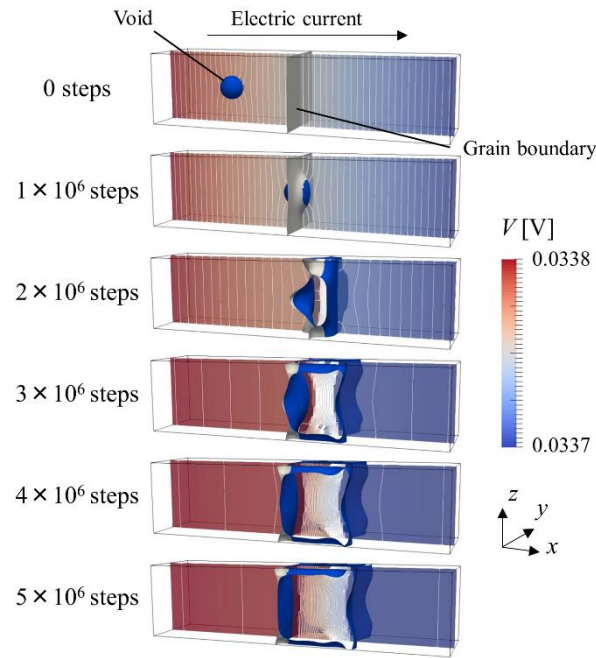


**Fig. 5.9** Schematic diagram illustrating the manner in which the atomic flux changes the void volume when the void (a) touches a grain boundary and (b) detaches from a grain boundary.



**Fig. 5.10** Isosurfaces of a void and a grain boundary at  $5 \times 10^5$  steps. The diffusion coefficient ratio,  $D_{gb}/D_s$  is set to (a) 2.75 and (b) 0.44, respectively.

次に,  $D_{gb}/D_s > 1$  と  $\gamma_s > \gamma_{gb}$  のどちらが配線の故障を引き起こす必要条件であるかを調査する. Case 2 と 5 のボイドは, 粒界において配線が断線するように配線幅方向に成長する. **Figure 5.11** に, 最もボイドの体積が早く増加した Case 5 のシミュレーション結果を示す. 界面エネルギーの設定に着目すると, Case 2 では  $\gamma_s = \gamma_{gb}$ , Case 5 では  $\gamma_s > \gamma_{gb}$  であるが, いずれもボイドの成長によって断線した. 逆に, Case 8 では,  $\gamma_s > \gamma_{gb}$  の条件下であっても断線につながるようなボイド成長は生じなかった. これらの結果から, 界面エネルギーの設定によって生じる原子拡散流束  $\mathbf{J}_{ij, \text{diff}}$  は, 配線の断線につながるボイド成長に強く影響しないことがわかる. 一方で  $D_{gb}/D_s$  を比較すると, 配線の断線が生じた Case 2 と 5 の値は, Case 8 と比較して大きい. このことから,  $D_{gb}/D_s$  の値が, 配線の断線を引き起こすボイド進展に影響を与える重要な要素であり,  $D_{gb}/D_s > 1$  であれば, ボイドが粒界で成長することで配線が断線する可能性がある結論づける. さらに, 本節で示すシミュレーション結果は,  $D_{gb}/D_s \leq 1$  に近づくように粒界の拡散係数を小さくすることで, 配線の寿命を延ばすことが可能であることを示唆する. この結論は, 粒界拡散の防止が配線寿命の延伸のための実用的な手段であることを示した先行研究 [140] の主張と一致する.

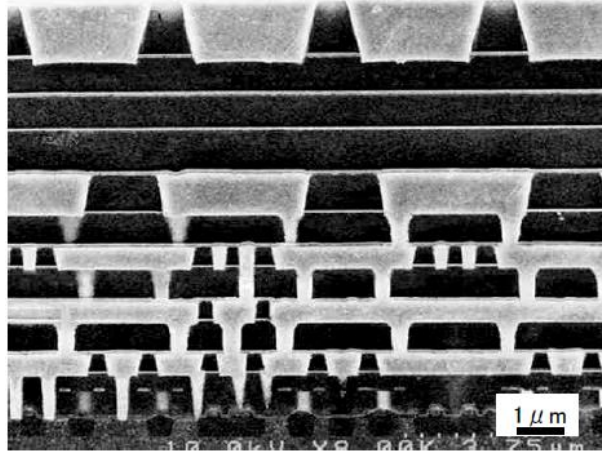


**Fig. 5.11** Snapshots of a migrating void and the interaction between the void and grain boundary in a copper straight bamboo interconnect line for Case 5. The blue and gray surfaces indicate the void surface and grain boundary, respectively. The color contour shows the distribution of the electric potential along the cross-section at  $y = 32$  nm, and the solid white lines are equipotentials.

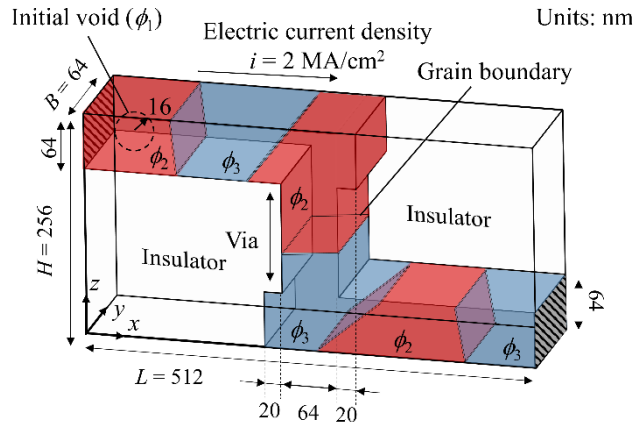
## 5.6 矩形多結晶配線における配線の断線位置の評価

実際の LSI の配線は, **Fig 5.12** に示すような積層構造を有する [201]. ボイドは, 積層された配線間を繋ぐビア近傍で成長し, 断線につながりやすいことが知られている [145, 146]. そこで本節では, LSI 内部のビア近傍を模した矩形のバンブー銅配線において, EM により複数のボイドが移動する 3 次元シミュレーションを実施する. このシミュレーション結果から, 本研究で構築した MPF モデルによるボイド移動シミュレーションが, 実際の配線内部で生じるボイド移動と多結晶組織変化の予測に有効であることを示す.

**Figure 5.13** に, ビア近傍を模した 3 次元計算領域を示す. 計算領域の大きさは  $512 \times 64 \times 256$  nm<sup>3</sup> とする. 矩形配線内のボイド移動を計算するために, PF 変数と電位分布は, **Fig. 5.13** で赤と青で示される銅の結晶粒内でのみ計算を行う. 配線内の 6 つの結晶粒は, それぞれ隣接する結晶粒とのみ接すると考え, 計算コスト削減のために **Fig. 5.13** に示すように結晶粒を  $\phi_2$  と  $\phi_3$  のみで定義する. 赤色と青色はそれぞれ  $\phi_2$  と  $\phi_3$  に対応する. 白色の領域は絶縁層である. 絶縁層は, 電気抵抗が配線と比較して十分に大きく, 電流が印加されても PF 変数  $\phi_i$  は変化がしないと考える. 配線内の多結晶組織変化が絶縁層の形状を変化させることは無いものとし, 結晶粒と絶縁層の界面には零ノイマン境界条件を与える.



**Fig. 5.12** SEM image of multilayer interconnect line with six layers [201].



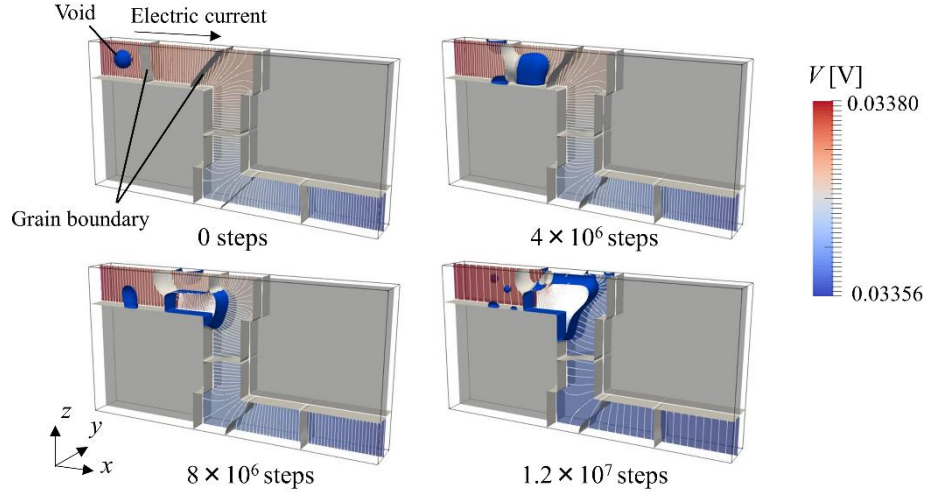
**Fig. 5.13** Three-dimensional simulation model and simulation domain used to analyze the evolution of voids in a copper bamboo interconnect line within a via. The interconnect line is composed of six grains. The red and blue domains are defined as the crystal grains for which  $\phi_2 = 1$  and  $\phi_3 = 1$ , respectively, and the white domains are insulating layers where  $\phi_i = 0$ .

電流は配線の左端から右端に向かって流れるように印加され、電位は、電流の入口と出口となる面でそれぞれ一定とする。その他の面には、零ノイマン境界条件を適用する。また、PF変数 $\phi_i$ については、計算領域のすべての面で零ノイマン条件とする。ボイドが成長し配線が故障するまでの間に、小さな複数のボイドが配線に生じることが報告されている [202, 203]. そこで本節のシミュレーションでは、一定時間ごとにボイドを計算領域に生成することで、配線の外部から EM により移動して計算領域に入るボイドや、ボイドの核形成を模擬する。シミュレーションの初期条件では、球形状のボイドを **Fig. 5.13** に示す位置に配置する。この初期ボイドは、半径が  $r = 16 \text{ nm}$  であり、中心座標が  $(x, y, z) = (50 \text{ nm}, 32 \text{ nm}, 224 \text{ nm})$  である。ボイドの生成間隔の異なる 3 つの MPF シミュレーションを行い、その間隔はそれぞれ  $\nu = 2 \times 10^5 \text{ step}$ ,  $6 \times 10^5 \text{ step}$ ,  $1 \times 10^6 \text{ step}$  とする。生成するボイドは球形状とし、その半径は  $9 \text{ nm}$  から

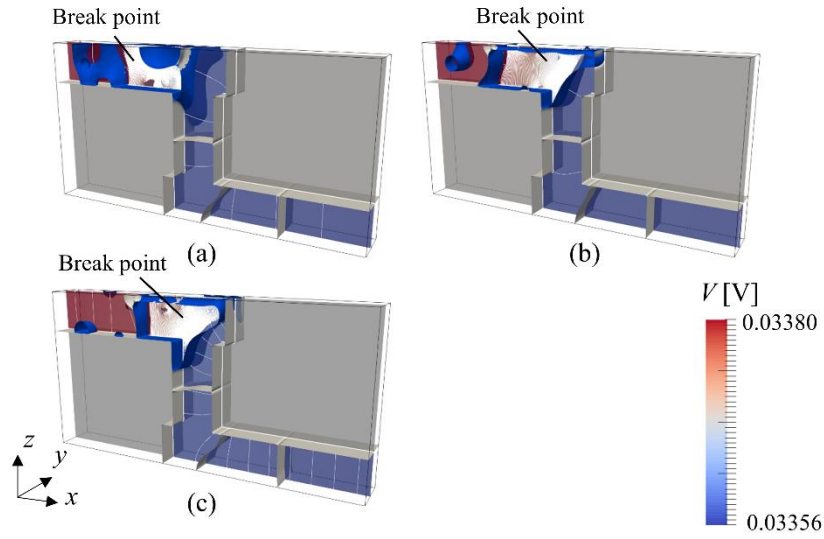
16 nm の範囲で、中心座標は  $(x, y, z) = (50 \text{ nm}, 0 \text{ nm} - 64 \text{ nm}, 192 \text{ nm} - 256 \text{ nm})$  の範囲でランダムとする。計算回数の上限は  $1.5 \times 10^7 \text{ step}$  とする。この計算回数に達するまでに、配線がボイドの成長によって完全に断線されたことが確認できれば、その時点で計算を終了する。MPF シミュレーションに用いるその他の条件は、前節の Case 8 と等しい。

**Figure 5.14** に、ボイドの発生間隔が  $1 \times 10^6 \text{ step}$  でのボイド進展を示す。EM によるボイドから粒界への原子の流出と、ボイド同士の結合により、ボイドは成長する。特に、ボイドはビアの上側の粒界で、粒界に沿って大きく成長する。その結果、ボイドがビアの上部で蓄積し、断線につながる。**Figure 5.15** には、ボイドの発生間隔が異なるシミュレーションでの、計算終了時のボイドの分布を示す。 $\nu = 6 \times 10^5 \text{ step}$  と  $1 \times 10^6 \text{ step}$  では、 $1.5 \times 10^7 \text{ step}$  で計算が終了した一方で、 $\nu = 2 \times 10^5 \text{ step}$  の条件では、 $1.04 \times 10^7 \text{ step}$  で計算が終了した。

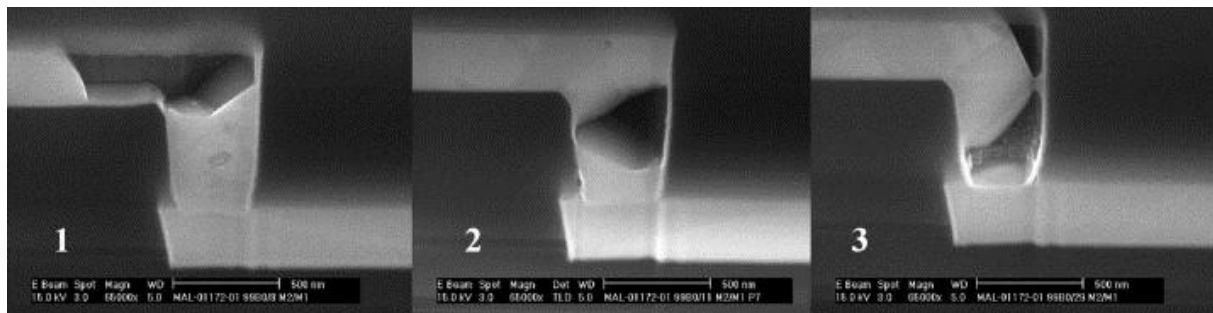
ここで、**Fig. 5.15** に示すシミュレーション結果を、先行研究 [145, 146, 204] で観察された、EM により故障した銅配線と比較する。**Figure 5.16** は、先行研究 [145] で観察された走査型電子顕微鏡 (SEM) 像の一例である。本研究の MPF シミュレーションで使用した粒界分布、配線形状、そして物性値は、実際の配線を完全に再現するものではない。しかしながら、実験画像に示されている配線の断線位置にのみ着目すると、本研究の MPF モデルを用いたシミュレーションは、ボイド発生間隔にかかわらず、いずれも **Fig. 5.16-1** に示されるビア上部での故障を定性的に再現した。ボイド発生間隔によって故障位置が変化しない理由は、全条件で初期状態の粒界分布が等しいためであると考えられる。定量的にシミュレーション結果と実験結果を比較するために、配線の面積とボイドの面積の比として定義する損傷率を計算する。実験画像から得られる配線の損傷率は、6.7% ~ 19.9% の範囲であった。一方で、 $\nu = 2 \times 10^5 \text{ step}$ ,  $6 \times 10^5 \text{ step}$ ,  $1 \times 10^6 \text{ step}$  であるシミュレーション結果から計算される、 $xz$  平面での損傷率は、それぞれ 19.4%, 20.9%, 18.6% である。なお、損傷率を算出した計算 step 以降は、配線の幅方向にボイドが大きく成長したことで電流がほとんど流れないため、損傷率は変化しない。シミュレーション結果から算出された損傷率は、ボイドの発生間隔によって変化するが、いずれも実験画像から計算した損傷率に近い値となる。以上の結果から、本研究で構築した MPF モデルは、ボイドの移動、体積変化および粒界変化を予測するための、有効な手段であることを実証した。



**Fig. 5.14** Snapshots of migrating voids and the interaction between the voids and grain boundaries in a copper bamboo interconnect line inside a via site. The blue and gray surfaces indicate the void surface and grain boundary, respectively. The color contour shows the distribution of the electric potential along the cross-section at  $y = 32$  nm.



**Fig. 5.15** Distributions of the voids at (a)  $1.04 \times 10^7$ , (b)  $1.5 \times 10^7$ , and (c)  $1.5 \times 10^7$  computational steps. The void generation interval was (a)  $\nu = 2 \times 10^5$  steps, (b)  $\nu = 6 \times 10^5$  steps, and (c)  $\nu = 1 \times 10^6$  steps, respectively. The blue and gray surfaces indicate the void surface and grain boundary, respectively. The color contour shows the distribution of the electric potential along the cross-section at  $y = 32$  nm.



**Fig. 5.16** SEM images of an interconnect line with a void after the electromigration experiments performed in a prior study [145]. These images show cross-sections of the same wafer but with different distributions of grain boundaries.

## 5.7 結言

本研究では、バンブー構造を有する多結晶配線内の、EM によるボイド移動、マイクロ組織変化、電位分布変化を 3 次元で解析可能な、新しい MPF モデルを開発した。本章では、MPF モデルを用いた数値シミュレーションを行い、以下に示す結論を得た。

- 1) EM によって単結晶銅配線内を移動する球形状ボイドの 3 次元シミュレーションを行い、MPF モデルの妥当性を検証した。その結果、MPF シミュレーションは解析解との相対誤差が 5.85%で、ボイド移動を解析することが可能である。
- 2) バンブー構造を有する銅配線において、EM によって球形状ボイドが移動し、粒界を通過する MPF シミュレーションを実施した。その結果、ボイドが通過することによる粒界の形状変化を 3 次元で解析することに成功した。本研究で得られた粒界の形状変化は、先行研究 [162] で得られた 2 次元のシミュレーション結果の特徴を定性的に再現するものであり、MPF モデルのさらなる妥当性も示された。
- 3) 粒界に接触したボイドが成長し、配線の断線を導くための重要な因子を解明した。パラメトリックスタディの結果、粒界とボイド表面での原子の拡散係数の比  $D_{gb}/D_s$  が、断線につながるボイドの成長を引き起こすために大きな役割を果たすことが明らかになった。この結果は、粒界の拡散係数を下げることが、配線寿命を延ばすことにつながることを示唆する。
- 4) LSI のビア近傍を模したバンブー構造の銅配線において、EM によって複数のボイドが移動する 3 次元 MPF シミュレーションを実施した。その結果、ボイドの生成間隔によらず、ボイドはビア上部に蓄積することで配線が断線した。このシミュレーション結果で得られた配線の故障位置は、実際の実験で観測された故障位置と定性的に一致した。

以上の結果より、本研究で提案した MPF モデルは、バンブー構造を有する多結晶配線内で生じる、EM によるボイドや多結晶組織の 3 次元的な移動と進展を解析するための有効なシミュレーション手法であることを実証した。



## 第 6 章

# ベイズ最適化を用いる新データ同化手法を 活用した多結晶配線内の粒界分布推定手法の開発

### 6.1 緒言

エレクトロマイグレーション (EM) によって移動するボイドの移動経路や、ボイド成長による配線の断線位置は、粒界分布に依存する [145, 153, 169]. 前章 6 節に示した結果においてもこの主張を支持する結果が得られており、すべてのシミュレーション条件で粒界分布が同じである場合は、ボイドの発生間隔や発生数、発生位置の変化に関わらずビア上部でボイドが蓄積して断線に至った。したがって、配線の故障特性を予測するためには、故障前の配線内部の粒界分布と、故障位置を関連付けることが重要である。本研究で開発したマルチフェーズフィールド (MPF) モデルを用いて、様々な粒界分布に対して EM によるボイド移動シミュレーションを行うことで、粒界分布と故障位置の関連付けを行うことは可能である。しかしながら、実験観察された配線の故障位置を、あらゆる条件で網羅的に MPF シミュレーションを行うことで再現することには、膨大な計算コストを必要とする。そのため、実験データから粒界分布を逆推定する技術が、粒界分布を制御するための知見を得るために有用となる。

そこで本章では、本研究で新しく開発し、4 章でも使用したデータ同化手法である DMC-BO を、EM によるボイド移動の MPF シミュレーションに適用することで、EM 試験で観察された実験データからボイドの成長が生じる前の初期状態の配線内粒界分布を推定する。ただし、EM によるボイド移動は、微細な配線内部で発生するため、通常データ同化で使用する時系列の実験データを得ることは難しい。そのため、本研究では DMC-BO を使用して、配線が断線に至った後の状態で観察された単一の実験画像のみから配線の断線位置を再現する粒界分布の推定を行う。そして、推定結果から、DMC-BO が実験データに基づき、多結晶配線内部の粒界分布を推定する能力を有することを明らかにする。

### 6.2 目的関数の定義

微細な配線内部で移動するボイドの時系列観測データを、実験で直接観察することは困難である。そこで、配線内で成長したボイドが観察された時刻  $t = t_{\text{end}}$  における単一の観測データのみから、ボイドが系に侵入した直後の粒界分布及びボイドの位置を推定する。DMC-BO によって粒界分布を推定するために使用する目的関数として、次式で示す評価関数を用いる。



$$J(\mathbf{x}_0) = \frac{1}{2}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \frac{1}{2}(\mathbf{H}(\mathbf{M}(\mathbf{x}_0)) - \mathbf{y}_{t_{\text{end}}})^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{H}(\mathbf{M}(\mathbf{x}_0)) - \mathbf{y}_{t_{\text{end}}}) \quad (6.1)$$

観測データは 1 個のみを扱うため、一般的に 4 次元変分法 (4DVar) で使用される評価関数 (式(2.60)) と異なり、背景誤差共分散行列  $\mathbf{R}$ 、と観測演算子  $H$  は時間依存性を持たない。また、本章では  $M$  は時刻  $t = 0$  から  $t_{\text{end}}$  まで EM によるボイド移動の MPF シミュレーションを実行することを意味するモデル演算子であり、 $\mathbf{x}_{t_{\text{end}}} = M(\mathbf{x}_0)$  である。式(6.1)で定義する評価関数  $J(\mathbf{x}_0)$  を、BO を使用して最小化することで、粒界分布を表現する初期状態ベクトル  $\mathbf{x}_0$  を推定する。式(6.1)は、時間の要素を含まない 3 次元変分法で使用される評価関数とみなすこともできるが、推定する  $\mathbf{x}_0$  と、観測データ  $\mathbf{y}_{t_{\text{end}}}$  の時刻が異なることは留意すべきである。

### 6.3 観測データの作成

Meyer ら [145] によって観察された 2 次元の SEM 像から、データ同化に使用する観測データを作成する。Figure 6.1 に、データ同化に使用する観測データの作成手順を示す。本章では、Fig. 5.15-2 に示された配線内部の粒界分布を推定対象とする。はじめに、Fig. 5.15-2 の SEM 像から、黄色の枠線で示すボイド周囲の領域を切り出す。この領域は、一辺の長さが 64 で割ることが可能な、857.6 nm の正方形領域である。この切り出した領域に対して、一辺が 64 ピクセルとなるように画像を変換する。この画像変換には、Python の OpenCV ライブラリ (version 4.5.2.54) [205] に含まれる `resize` 機能を使用する。その後、配線領域とボイド領域を区別するために、画像に対して二値化処理を行う。この二値化処理は、手動で行った。変換後の画像のピクセル間隔は 13.4 nm である。その後、二値化した結果に基づき、ボイド領域を  $\Phi = 1$ 、それ以外の領域を  $\Phi = 0$  と定義する。本章では、黒い線で囲まれた領域の  $\Phi$  を、観測データとして使用する。したがって、観測ベクトルは以下で定義する。

$$\mathbf{y}_{t_{\text{end}}} = [\Phi]^T \quad (6.2)$$

ここで、 $\Phi$  は黒い線で囲まれた領域内の  $N_{\text{grid}}$  個の  $\Phi$  をまとめたベクトルである。

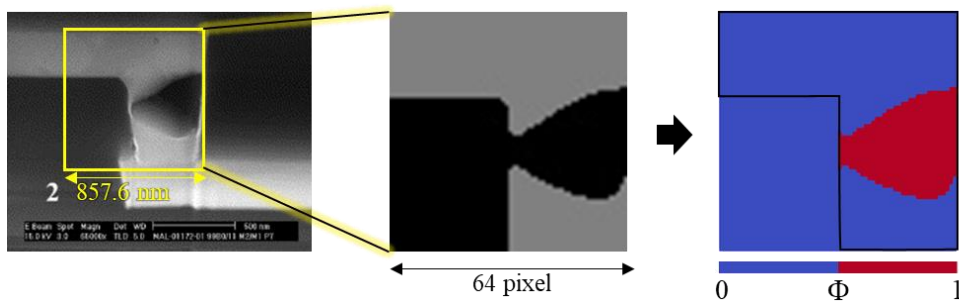
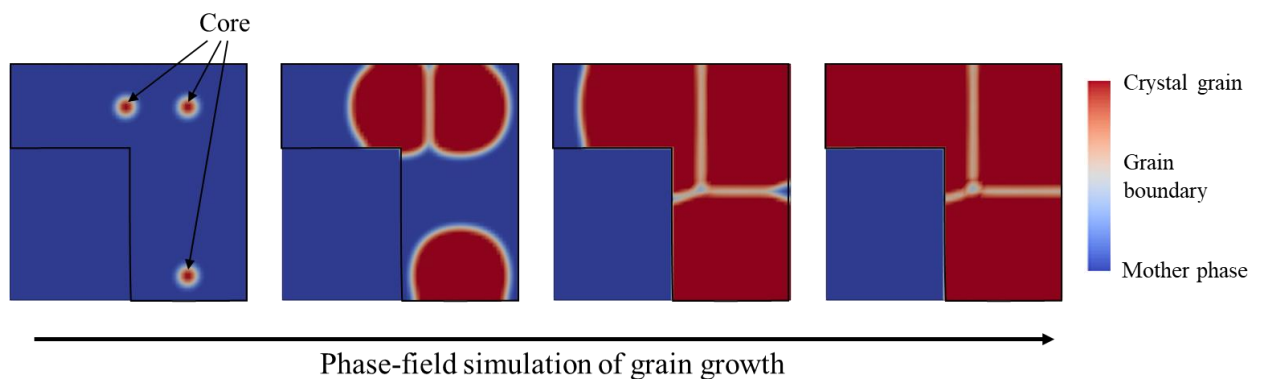


Fig. 6.1 Procedure for making observation data from a SEM image observed in the experiment [145].

## 6.4 粒界分布の推定方法の検討

**Fig. 6.1** に示す, 推定対象とする銅配線はバンブー構造を有すると仮定する. また, 実験で観察された **Fig. 5.15** に示すボイドは, 粒界に沿って成長したと考察されている. この考察をもとに, **Fig. 5.15-2** のボイドの上下にはボイドが成長する導線として働く粒界が存在したと考える. また, 粒界分布推定に用いる観測データは 2 次元のデータであるが, EM によるボイド移動 MPF シミュレーションは 3 次元で実施する. これは, 3 次元的な曲率によってもボイドや粒界の形状変化が生じるためである. したがって, 本章では 3 つの結晶粒を含む銅配線内の, 2 つの粒界の 3 次元的な分布を推定する.

粒界分布の推定は, 初期状態ベクトル  $\mathbf{x}_0$  に系の状態を表す PF 変数  $\phi$  を含めることで可能であるが, 3 次元の計算領域に含まれる全規則差分格子点の  $\phi$  を最適化するためには, 非常に高次元の  $\mathbf{x}_0$  を BO によって最適化する必要がある. しかしながら, 高次元の最適化問題を BO によって効率的に解く手法は未だ確立されておらず, 現在も多くの研究で議論されている課題である [206, 207]. そこで, 高次元最適化問題を扱うことを回避するために, 多結晶粒成長 PF シミュレーション [170, 171] により作成する粒界分布を初期状態の粒界分布とする. **Figure 6.2** に, 多結晶粒成長 PF シミュレーションによって粒界分布を作成する例を示す. 多結晶粒成長 PF シミュレーションでは, 計算領域内に複数の結晶粒の核を配置し, それぞれの核を成長させる. 成長した結晶粒間の界面が粒界である. 結晶粒の核の座標を DMC-BO によって推定することで, BO で高次元の最適化問題を扱わず間接的に粒界分布を推定することができる. 多結晶粒成長 PF シミュレーションは粒界分布を作成することのみを目的とするため, シミュレーションに用いる材料パラメータや粒成長速度の駆動力の大きさは等方的な仮定値を用いる. 計算領域の境界には零ノイマン条件を用いて, 系が定常状態となるまで計算を行うことで, 粒界分布を作成する. また, ボイドの成長による配線故障位置は, ボイドの初期位置にも依存すると考え, 初期状態として配置する球形状のボイドの中心座標も同時に推定する.

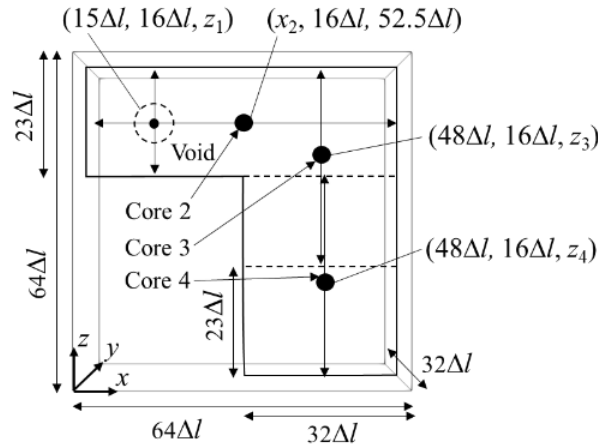


**Fig. 6.2** Snapshots of growing crystal grains obtained from a PF simulation of grain growth that performed to create an initial distribution of grain boundary in the interconnect line. The black line indicates the shape of the line.

本章で実施する MPF シミュレーションの計算領域は, **Fig. 6.3** に示すように, **Fig. 6.1** に示した観測データの視野を奥行方向に拡張した 3 次元直方体領域とする. 規則差分格子間隔は観測データのピクセル間隔と等しい  $\Delta l = \Delta x = \Delta y = \Delta z = 13.4 \text{ nm}$  である. 推定する 3 つの結晶粒の核を, それぞれに対応する PF 変数  $\phi_i$  の番号  $i$  と関連させて, Core 2, 3, 4 と呼ぶ. 本研究では, 最適化問題を簡略化するために, Core 2 の  $y$  座標と  $z$  座標および, ボイド, Core 3, 4 の  $x$  座標と  $y$  座標をそれぞれ **Fig. 6.3** に示すように固定する. したがって, 最適化する初期の状態ベクトル  $\mathbf{x}_0$  は次式で定義する.

$$\mathbf{x}_0 = [z_1, x_2, z_3, z_4] \quad (6.3)$$

ここで,  $x_2$  は Core 2 の  $x$  座標,  $z_1, z_3, z_4$  はそれぞれボイド, Core 3, 4 の  $z$  座標である. BO では, 最適化するパラメータが取り得る値の範囲を決める必要がある. 本研究では, 推定するパラメータが取り得るそれぞれの範囲を,  $42\Delta l \leq z_1 \leq 64\Delta l$ ,  $0 \leq x_2 \leq 64\Delta l$ ,  $23\Delta l \leq z_3 \leq 64\Delta l$ ,  $0 \leq z_4 \leq 41\Delta l$  とする.



**Fig. 6.3** Three-dimensional computational domain used to estimate an initial position of a void and distributions of grain boundaries

$\mathbf{x}_0$  を用いた時刻  $t = t_{\text{end}}$  までの MPF シミュレーションにより, 次式で表す状態ベクトルが得られる.

$$\mathbf{x}_{t_{\text{end}}} = M(\mathbf{x}_0) = [\phi_i^{t_{\text{end}}}]^T \quad (6.4)$$

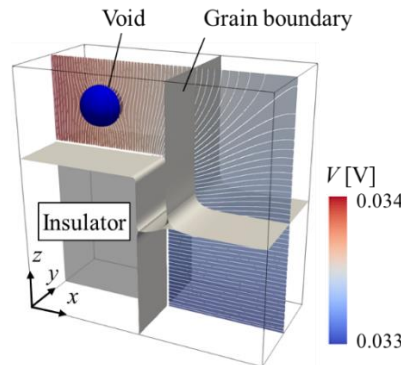
ここで,  $\phi_i^{t_{\text{end}}}$  は, 計算領域内の全規則差分格子点上での  $\phi_i$  をまとめたベクトルである. MPF シミュレーションは 3 次元で行う一方で, 観測データは 2 次元である. そのため,  $\mathbf{x}_{t_{\text{end}}}$  に含まれる  $\phi_i$  について,  $y$  方向の  $\phi_i$  がすべて  $\phi_i > 0.5$  となる座標  $(x, z)$  では  $\Phi' = 1$ , そうでない座標では  $\Phi' = 0$  と定義することで,  $\mathbf{x}_{t_{\text{end}}}$  を 2 次元のデータから構成されるベクトルに変換する. またこのとき, 観測演算子  $H$  と  $\mathbf{x}_{t_{\text{end}}}$  の関係を次式で表す.

$$H(\mathbf{x}_{t_{\text{end}}}) = [\Phi']^T \quad (6.5)$$

ここで、 $\Phi'$ は、Fig. 6.1 に示す黒い線で囲まれた領域内の、 $N_{\text{grid}}$  個の $\Phi'$ をまとめたベクトルである。

## 6.5 数値シミュレーション条件

配線に印加する電流密度は  $i = 2 \text{ MA/cm}^2$  とする。配線は先行研究 [145] の実験で使用されたものと同じく銅とし、ボイド表面および粒界の有効電荷数は  $Z_s^* = Z_{gb}^* = 5$  とする [168, 193]。5 章のように有効電荷数に大きな値を使用しない理由は後述する。ボイド表面および粒界の界面エネルギーは、それぞれ  $\gamma_s = 1.35$ ,  $\gamma_{gb} = 0.945$  とする [163, 208]。MPF シミュレーションに使用するその他の物性値は 6.6 節で使用した値と等しい。Figure 6.4 に、ボイド、粒界および電位分布の初期状態の例を示す。電流は配線の左端から下端にかけて流れるように印加され、電位は、電流の入口と出口となる面では一定とする。その他の計算領域の境界面は零ノイマン条件とする。PF 変数  $\phi$  については、すべての境界面で零ノイマン条件とする。加えて、6.6 節と同様に、配線領域外部は絶縁層であると仮定し、結晶粒と絶縁層の界面にも零ノイマン境界条件を適用する。



**Fig. 6.4** Initial distributions of a void, grain boundaries, and electric potential. The color contour indicates the distribution of the electric potential over the cross-section at  $y = 16\Delta l$  and the solid white solid lines indicate equipotentials.

MPF シミュレーションに使用する時間増分は  $\Delta t = 0.025 \text{ s}$  とし、次の 3 種類のいずれかの終了条件を満たすまで計算を行う。

- I. ボイドが定常状態となる。
- II. ボイドが消失する。
- III. ボイドが移動開始から 150 h 経過する。

I の終了条件について、定常状態を判別するために、以下の二乗平均平方根誤差 (RMSE) を定義する。

$$\varepsilon_{\text{RMSE}} = \sqrt{\frac{1}{N_{\text{grid}}} (\boldsymbol{\phi}^t - \boldsymbol{\phi}^{t-1})^T (\boldsymbol{\phi}^t - \boldsymbol{\phi}^{t-1})} \quad (6.6)$$

$1.44 \times 10^5$  step の計算を行い、ボイド移動の 1 h の変化を解析することに  $\varepsilon_{\text{RMSE}}$  を評価し、 $1 \times 10^{-5}$  よりも小さい場合に計算を終了する。II の終了条件については、計算領域内の  $\phi_i$  の総和  $\sum \phi_i$  が 0.1 以下となった際にボイドが消失したと判定する。本章のシミュレーション条件では、ボイドが粒界で成長する場合、ボイドが粒界と接触してから 100 h 以内には断線に至ることが予察的な検討から確認されている。しかしながら、特定の粒界分布では、EM による駆動力と粒界からのピン止め力によって、ボイドが粒界で揺れ動く現象が生じる。この揺動が生じると、I と II の終了条件はいずれも満たされない。そこで、III の終了条件を設定する。ボイドが移動開始してから 150 h 経過後、すなわち  $2.16 \times 10^7$  step の計算が行われると、MPF シミュレーションは終了する。

第 5 章では、MPF モデルを用いたシミュレーションは、複数の CPU を使用した並列計算によって行った。しかしながら、複数 CPU による並列計算であっても、1 回のシミュレーション結果を得るには 1 週間以上の時間を要していた。DMC-BO によってデータ同化を行う場合は、最適化のために MPF シミュレーションを繰り返し行う必要があるため、従来の計算手法では膨大な時間を要する。そこで、さらなる計算の高速化のために、数値計算に GPU を使用する新しいプログラムを開発した。この新たな数値計算プログラムにより、約 43 倍の計算速度向上を実現した。これにより、従来 1 週間の時間を要したシミュレーションを、4 時間程度で行うことが可能となった。加えて、5 章では計算コストを削減するために、有効電荷数  $Z_s^*$ 、 $Z_{gb}^*$  に大きな値を設定しボイドの移動を加速したが、計算が大幅に高速化したことでその必要性がなくなったため、本章では現実的な値を使用する。

BO には、EI 獲得関数を使用し、活用戦略と探索戦略のトレードオフを決定するパラメータ  $\xi$  は、 $\xi = 0.01$  [62] とする。Table 6.1 に、初期推定の状態ベクトル  $\mathbf{x}_0^b$  に含まれる各パラメータの初期推定値と、背景誤差共分散行列  $\mathbf{B}$  を定義するための、初期推定値に含まれる不確かさの標準偏差を示す。初期推定値は、それぞれのパラメータがとりうる範囲の中央値とする。この初期推定値を使用して得られるボイド、粒界分布が Fig. 6.4 に示されている。標準偏差は、経験的に与えた。また、観測誤差共分散  $\mathbf{R}$  を定義するパラメータ  $\sigma$  は  $\sigma = 0.1$  とする。BO で事前分布を計算するためのデータセットとして、Fig. 6.3 に示す範囲からランダムに生成した 5 つの  $\mathbf{x}_0$  を使用する。BO による  $J(\mathbf{x}_0)$  の最小化反復計算の回数は、300 回を上限とする。BO の実行には、4 章と同じく GPyOpt ライブラリ [192] を用いる。

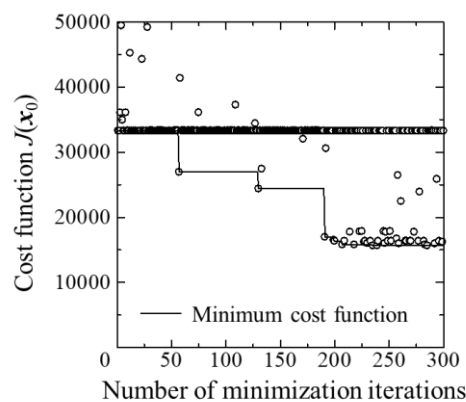
**Table 6.1** Mean and standard deviation of Gaussian distribution used to determine the initially estimated parameters.

Parameter	$z_1$	$x_2$	$z_3$	$z_4$
Mean of initially estimated parameter	$52.5\Delta l$	$32.0\Delta l$	$52.5\Delta l$	$7.5\Delta l$
Standard deviation of error included in initially estimated parameters	$5.0\Delta l$	$5.0\Delta l$	$5.0\Delta l$	$5.0\Delta l$

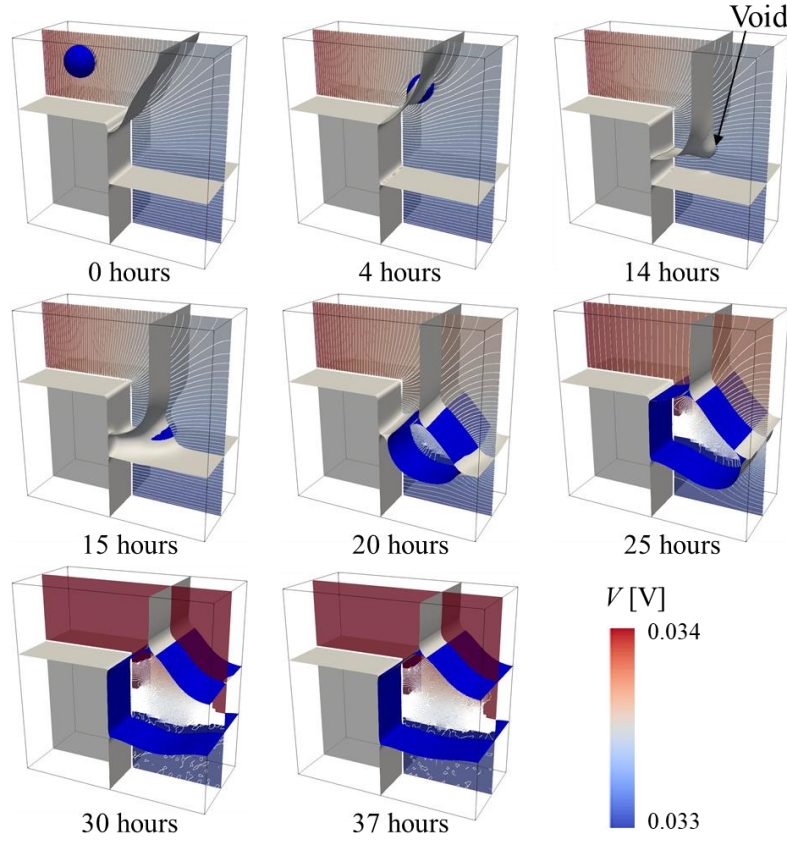
## 6.6 粒界分布の推定結果

Figure 6.5 に, BO を使用した最適化の反復回数に対する評価関数  $J(\mathbf{x}_0)$  と,  $J(\mathbf{x}_0)$  の最小値の推移を示す. 多くの場合で,  $J(\mathbf{x}_0) \approx 33000$  である. これは, ボイドは粒界で成長せず停止, 揺動する場合や, ボイドが粒界で収縮して消失する場合など, 配線が故障しないことを表している. この結果から, 最適化するパラメータの種類や範囲の設定により作成する粒界分布は, 配線の故障につながりにくいことが読み取れる.

反復回数が 190 回以降で,  $J(\mathbf{x}_0)$  の最小値が概ね収束した. 300 回の反復の中で, 最後に最小値を更新したのは 235 回目であり, 235 回目の反復で得られた  $\mathbf{x}_0$  を  $\mathbf{x}_0^d$  とすると,  $\mathbf{x}_0^d = [54.8285\Delta l, 30.7224\Delta l, 42.0463\Delta l, 2.7547\Delta l]$ ,  $J(\mathbf{x}_0^d) = 15652.78$  である. Figure 6.6 に, 推定された初期状態のボイドおよび粒界の分布と,  $\mathbf{x}_0^d$  を使用して得られる MPF シミュレーション結果を示す. 計算開始から 4 h 後に, ボイドは粒界に接触し, 14 h までボイドは粒界を引きながら進行する. ボイドが粒界に接触した瞬間には, 粒界を通じて原子がボイドに流入するため, この段階のボイドの体積は, 初期ボイド体積の 35 %程度の大きさで推移する. その後, 15 h で 2 つ目のボイドと粒界が接触すると, ボイドは粒界に沿って成長する. その結果, 30 h でボイドが配線の幅方向全域に達し, 断線が生じる. その後ボイドは曲率の効果によって緩やかに形状変化するが, 37 h の時点で定常状態に達する.



**Fig. 6.5** The cost function  $J(\mathbf{x}_0)$  as a function of the number of the minimization iterations. Black solid line shows the transitions of the minimum  $J(\mathbf{x}_0)$ .



**Fig. 6.6** Snapshots of morphological evolution of a void and grain boundaries due to EM. The interconnect line is broken at 30 hours after the time when the MPF simulation starts. The color contour shows the distribution of the electric potential along the cross-section at  $y = 32$  nm, and the solid white lines are equipotentials.

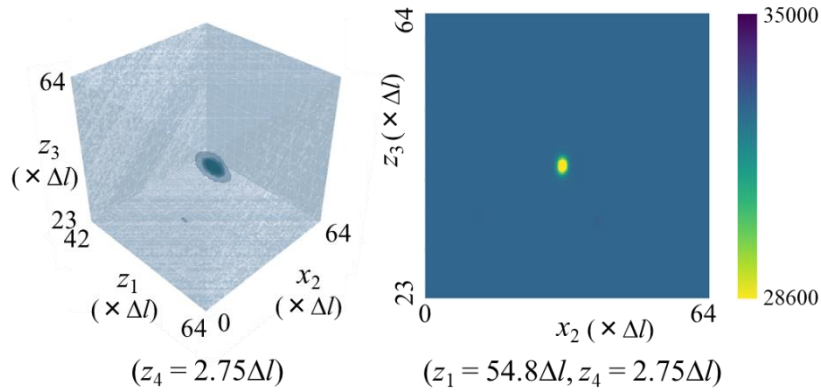
配線の故障位置について **Fig. 6.1** と **Fig. 6.6** を比較すると、断線に至った位置については、概ね一致した。この結果は、DMC-BO を使用すれば、1 つの実験データのみから、ボイドによる配線の故障位置を再現する粒界の初期分布を推定可能であることを示す。ただし、ボイドの形状については差があり、さらなる精度向上の余地がある。

ここで、BO による  $J(\mathbf{x}_0)$  の予測結果を確認するために、300 回目の反復計算で得られる、 $J(\mathbf{x}_0)$  の予測関数を可視化する。Figure 6.7 には、平均関数と標準偏差で表現される予測関数のうち、 $z_1, z_2, z_3$  を軸とする  $z_4 = 2.75\Delta l$  での 3 次元空間内の平均関数を可視化した結果を示す。平均関数は  $\mathbf{x}_0$  が得られた領域近傍のみで局所的に小さな値を持つ。このことから、本章で設定した 4 種類のパラメータの最適化による簡略的な粒界分布推定では、300 回の反復計算によって大域的な最適解が見つけられている可能性が高いと考えられる。またこの結果は、配線を断線させるボイドの形状をさらに実験結果に近づけるためには、推定するパラメータの種類を増やすことや、パラメータがとりうる値の範囲を広げるなどの変更が必要となることを示唆する。

さらに **Fig. 6.7** より、 $J(\mathbf{x}_0)$  は最小値近傍以外ではほとんど勾配を持たない関数であることが



わかる. 4DVar など変分法は, 評価関数の勾配 $\nabla J(\mathbf{x}_0)$ がゼロとなる  $\mathbf{x}_0$  を探索することで, 最適化を行う. そのため, **Fig. 6.7** に示されるような勾配を局所的にしか持たない関数に対しては, 最適化が難しいことが予測される. 一方で, DMC-BO に使用する BO は, 最適化に勾配 $\nabla J(\mathbf{x}_0)$ を使用しない. したがって本章で得られた結果は, DMC-BO を用いることで, 6.4 節に示した簡略化した条件であっても, ボイドによる故障位置を再現するような粒界分布を推定できたことを示唆し, これは新たに明らかになった DMC-BO の利点の一つである.



**Fig. 6.7** Distributions of the mean function of the predictive cost function. The left-hand side figure shows three-dimensional mean function at  $z_4 = 2.75\Delta l$  and the right-hand side figure shows two-dimensional distribution over the cross-section at  $z_1 = 54.8\Delta l$  in the left figure.



## 6.7 結言

本章では、多結晶配線内部の粒界分布を推定するために、DMC-BO によるデータ同化を、EMによるボイド移動と多結晶組織変化を予測するためのMPFシミュレーションに適用した。以下には、粒界分布の推定を実施したことで得られた成果と、明らかになった課題を示す。

- 1) EMによるボイドの成長によって断線した2次元のSEM像1枚のみの実験データを使用して、MPFシミュレーションでのボイドの位置と粒界分布の初期状態を推定した。推定されたボイド位置と粒界分布を使用したMPFシミュレーションにより、SEM像に示されるボイドの成長による配線の断線位置を再現することに成功した。一方で、断線に達した時点でのボイド形状の推定精度向上には、さらなる余地があることを示した。
- 2) BOで計算された予測関数を可視化することで、本章で設定したパラメータの最適化による粒界分布推定問題においては、DMC-BOによって最適解を見つけれられていることを示した。また、この結果から、ボイドの形状を精度よく再現するための粒界分布の推定精度を向上するためには、DMC-BOによって最適化するパラメータの選択や、それらのパラメータが取り得る値の範囲設定が重要であることが示唆された。
- 3) 粒界分布の推定とその結果の可視化を通じて、DMC-BOの新たな利点を明らかにした。評価関数が局所的にのみ勾配を有する関数である場合でも、DMC-BOは従来の4DVarのように評価関数の勾配を必要とすることはないため、DMC-BOを使用すれば推定が可能であることを実証した。

今後、断線時のボイド形状をさらに高精度に再現するような粒界分布を推定することが可能となれば、多結晶配線内部の粒界分布とEMによる故障位置の関係を明らかにすることが可能となる。これは、LSI配線の製造プロセスにおける粒界制御のための重要な知見となり、LSIの信頼性向上や長寿命化をもたらすことが期待できる。

## 第 7 章

# ベイズ最適化アプリケーションの開発

### 7.1 緒言

ベイズ最適化 (BO) で予測された目的関数を理解するためには、前章 6 節で示したように、ガウス過程回帰 (GPR) によって計算される予測関数の分布を可視化することが有効である。予測関数を表現する平均関数とその標準偏差を可視化することで、不確実性を伴う予測関数を容易に理解することができる。また、BO で計算される獲得関数を可視化することも、目的関数を最大化もしくは最小化する領域の分布を理解するための助けとなる。

加えて、1.1.3 項で述べたように、BO は、マテリアルズインフォマティクス (MI) やプロセスインフォマティクスのための有力なデータ科学手法として注目を集めている。そのため、BO を利用可能な Python ライブラリが多数開発されており、4 章や 6 章で使用した GpyOpt [192] の他にも BayesianOptimization [209], GPflowOpt [210], BoTorch [211], pyGPGO[212], COMBO [213], BayesO [214] などが存在する。しかしながら、これらの Python ライブラリは、Python のプログラムを実行可能なコンピュータ環境の構築や、Python ライブラリを使用するためのプログラミング技術を必要とする。このような環境構築やプログラミングの必要性は、プログラミングの専門知識を持たない研究者、特に実験を主体とする研究者にとっては、BO を利用した研究を行うための妨げとなる。この問題を解決するために、プログラミングが不要なアプリケーションも開発されている [68]。しかしながら、既存の Python ライブラリ/アプリケーションのほとんどは、BO から得られる平均関数、標準偏差、獲得関数の分布を可視化するための機能を有していない。GPyOpt ライブラリには、平均関数、標準偏差、獲得関数の可視化機能が実装されているが、既存の可視化機能は 2 次元までの最適化問題のみに対応している。そのため、実際にプロセスや実験条件の最適化を行う際に扱うこととなる高次元の最適化問題の計算過程を、GPyOpt を使用して理解することは難しい。著者の知る限りでは、完全にグラフィカル・ユーザー・インターフェース (GUI) ベースで、BO の実行やその結果の可視化が可能なアプリケーションは未だ存在しない。

Python の環境構築やプログラミングの必要が無く BO を実行や結果の可視化が可能なアプリケーションは、BO を利用した研究の促進と、BO 結果の理解を助ける有用なツールとなる。そこで本研究では、BO の実行と可視化が可能な世界初の BO 用 GUI アプリケーション BOXVIA (Bayesian Optimization Executable and Visualizable Application)を開発した。BOXVIA を使用することで、コンピュータの計算環境構築やプログラミングなしに BO を使用することができる。さらに BOXVIA は、BO を用いて 3 つ以上のパラメータの高次元最適化問題を扱う場合でも、平均関数、標準偏差、獲得関数の可視化が可能であるため、BO の計算過程を容易に

理解する助けとなる。本章では、開発した BOXVIA についての詳細な説明と使用例を示し、BOXVIA のもたらす社会的なインパクトを説明する。

## 7.2 アプリケーションの詳細

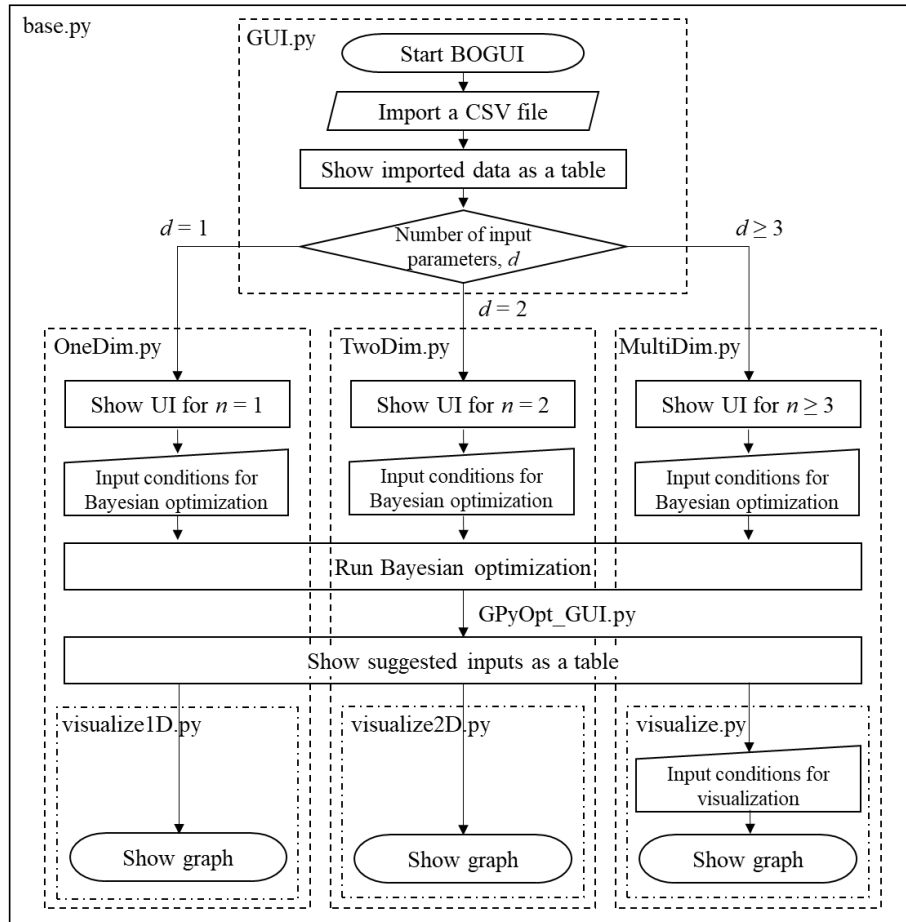
BOXVIA は、Python で web アプリケーションを作成することが可能な Dash [215, 216] をベースとして開発された。BOXVIA では、GPyOpt ライブラリを使用して BO を実行する。Python で書かれた BOXVIA のソースコードと、BOXVIA で使用する Python ライブラリを pyinstaller [217] によって統合する。これにより、BOXVIA は、Python を利用するためのコンピュータ環境の構築なしに動作するアプリケーションとして提供される。

Dash を用いて開発したアプリケーションは、web ブラウザで動作する。そのため、BOXVIA は web ブラウザが導入されてさえいれば、Linux, Windows, macOS のいずれの OS でも使用することができる。BOXVIA を使用するための Web ブラウザの種類に制限はなく、最新バージョンであれば Google chrome, Safari, Firefox, Edge など一般的なブラウザで動作する。

### 7.2.1 アプリケーションの構成

BOXVIA を利用するためには、最適化する目的関数への入力パラメータと、その入力から得られる出力の関係を 1 つ以上用意し、comma-separated variables (CSV) file として用意する。CSV ファイルは、1 行目にそれぞれのパラメータの名前を書き、2 行目以降に数値を入力する。出力となるパラメータは最右列に書き込む。

Figure 7.1 に、BOXVIA の動作フローを示す。用意した CSV ファイルを BOXVIA に読み込むことで、最適化問題の次元数、つまり最適化されるパラメータの個数  $d$  を自動で判別する。平均関数などの分布を可視化する際は、 $d$  に依存して種類の異なるグラフを描画する。そのため、 $d=1, 2, \geq 3$  の場合でそれぞれに対応した Python プログラムが動作する。一方で、表示される GUI およびその利用方法に大きな差はないため、ユーザーは  $d$  に関わらず同じように利用することができる。BOXVIA は最大で  $d=20$  まで扱うことが可能である。



**Fig. 7.1** Flowchart for starting Bayesian optimization and visualizing the distributions of mean function, standard deviation and acquisition function using BOXVIA.

### 7.2.2 アプリケーションの機能

BOXVIA は、ユーザーが上から順に操作するようにデザインされている。以下の各項では、CSV ファイルの読み込みから、BO の結果の可視化までについて、BOXVIA の機能を段階的に説明する。

#### Step 1: CSV ファイルの読み込み

CSV ファイルを読み込むと、読み込んだ CSV ファイルに記述されたデータが、表として表示される。この表の最下行は、“Delete bottom data”ボタンを押すことで削除することができる。この機能は、Step 3 で後述する機能によって、読み込んだデータが反映された表に後からデータが追加されることがあるために実装されている。

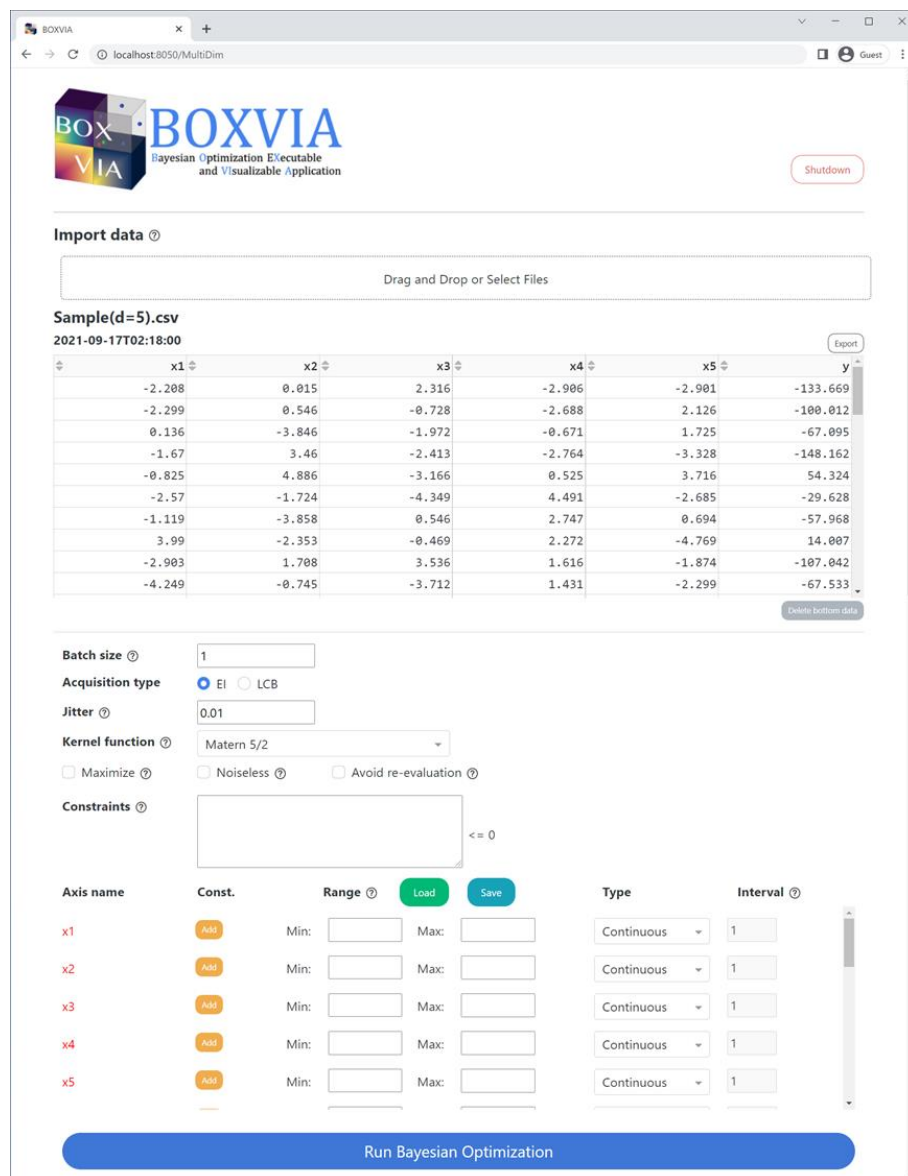
#### Step 2: BO の条件設定

**Figure 7.2** に、CSV ファイルを読み込んだ後に表示される BOXVIA の GUI を示す。BOXVIA で設定できる BO の設定を以下に示す。

- 1) **Batch size** – 一回の BO によって提案される入力候補点の数. BOXVIA で BO の計算に使用する GPyOpt では, Local penalization [218] と呼ばれるミニバッチ手法により, 一度に複数の入力を提案することが可能である. ここでは, その提案される入力数を設定する.
- 2) **Acquisition type** – 獲得関数の種類. BOXVIA では一般的によく用いられる EI 獲得関数と LCB 獲得関数 [62] が使用可能である.
- 3) **Jitter or weight** – BO における活用と探索のバランス [1, 219] を制御するハイパーパラメータ. EI では Jitter, LCB では Weight と呼ばれ, 2.4.2 節における  $\xi$  と  $\kappa$  を意味する. BOXVIA のデフォルトでは, GPyOpt のデフォルト値である Jitter = 0.01, Weight = 2 が設定される.
- 4) **Kernel function** – GPR で使用されるカーネル関数 [179] の種類. BOXVIA では, BO のために一般的に使用される, Matérn5/2 カーネル, Matérn3/2 カーネル, Radial basis function (RBF) カーネルを含む, 7 種類のカーネル関数を使用可能である.
- 5) **Maximize** – 目的関数の最大化. このオプションにチェックを入れることで, BO は目的関数を最大化する. チェックを入れない場合は, 目的関数を最小化する.
- 6) **Noiseless** – GPR で予測される関数のノイズレス評価 [192]. このオプションにチェックを入れると, 入力として与えたデータが誤差を含まないと設定され, 入力データが存在する箇所の標準偏差が強制的に微小量として扱われる.
- 7) **Avoid re-evaluating** – 同一入力データに対する再評価の回避. このオプションにチェックを入れると, 既にデータが存在する場所は入力として提案されなくなる.
- 8) **Constraints** – 制約条件の設定. 右辺が 0 となる不等式の形で, 提案される入力パラメータが満たすべき制約関数を, 代数形式で設定することができる. 算術演算子の書き方は Python 言語に従う. 改行することで, 複数の制約条件を同時に課することが可能である. 制約を加えない場合は空白でよい.
- 9) **Axis property** – “Axis name”に, CSV ファイルから読みこまれた各パラメータの名前が表示される. “Add”ボタンを押すことで, パラメータの名前を“Constraints”に挿入することができる. “Range”では, 各入力パラメータが取りうる値の範囲を設定する. “Type”では, BO によって提案されるそれぞれの入力パラメータの値が連続的か離散的かを選択する. 連続的に設定すれば, 入力パラメータは実数値で提案される. 離散的と設定すれば, “Stride”で設定する刻み幅で入力パラメータが提案される.

獲得関数やカーネル関数の設定により, 最適化の結果が変化することには注意が必要である. そのため, BOXVIA のデフォルト設定で最適化が失敗する場合は, これらの関数について最適なものユーザーが決定すべきである.

以上の設定を入力し, “Run Bayesian Optimization”ボタンを押すことで, BO による最適化が実行される.



**Fig. 7.2** Graphical user interface showing a table displayed by importing a CSV file and the components for setting and running Bayesian optimization.

### Step 3: BO によって提案された入力パラメータの表示

BO を実行して、提案された入力パラメータが表に表示される。この表は編集することができ、提案された入力に対応する出力を書き込むことができる。また、“Add suggest to input data” ボタンを押すことで、この表のデータを Step 1 で説明した読み込みデータの表の最下行に追加することができる。この機能を使用することで、読み込むオリジナルの CSV ファイルを直接編集することなく、BO による最適化の反復を行うことができる。

#### Step 4: BO の結果の可視化

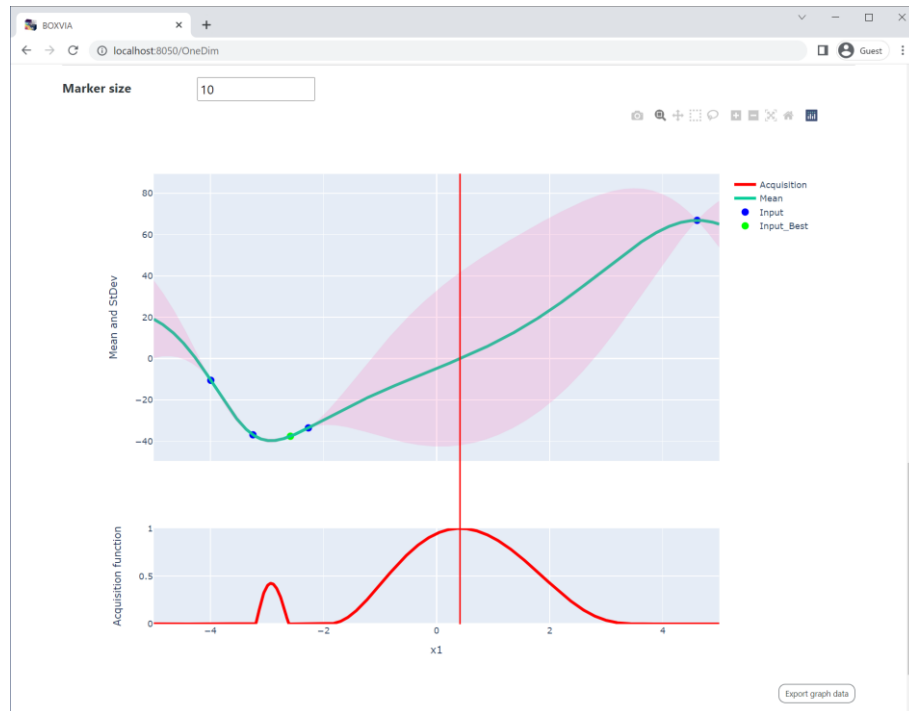
$d \leq 2$  ならば, BO を実行することで得られる平均関数, 標準偏差, 獲得関数は 2D グラフで表示される.  $d=2$  の場合, “3D surface”のスイッチを切り替えることで, グラフの種類を 2D のヒートマップグラフから 3D 表面グラフに変更できる.

$d \geq 3$  ならば, グラフを表示する前に以下の設定を行う. “Display axis”では, 3D グラフ構成する 3 つの軸を選択する. “Display data type”では, 平均関数, 標準偏差, 獲得関数のいずれの分布を表示するかを, “Mean”, “StDev”, “Acquisition”から指定する. “None”を選択することで, 読み込んだデータのみを 3D 空間内にマーカーで表示することも可能である. “Display 2D plane”では, “Display axis”で選択した 3 つのパラメータのうち, さらに 2D ヒートマップとして表示する断面の種類を選択する. 以上の設定を行った後に “Make / Reload graph”ボタンを押すことで, グラフが表示される. グラフ表示後に, グラフ下部のスライダーを調整することで, 2D 断面の位置やカラーバーの範囲を設定可能である. また  $d \geq 4$  の場合は, 3 次元空間を構成する軸に選ばれなかったパラメータについて, スライダーで調整してグラフを表示することができる.

### 7.3 使用例

本節では,  $d = 1, 2, 5$  のサンプル CSV ファイルをそれぞれ用意し, BOXVIA を使用して最適化計算を行う 3 つの例を示す. サンプルとなる CSV ファイルは, 最適化問題のテスト関数の一つである Styblinski–Tang function [220] を使用してランダムに作成する. Styblinski–Tang function は,  $d$  個のパラメータ  $x_i$  ( $i = 1, 2, \dots, d$  かつ  $-5 \leq x_i < 5$ ) が,  $(x_1, x_2, \dots, x_N) = (-2.903534, -2.903534, \dots, -2.903534)$  のとき最小値  $f(x_1, x_2, \dots, x_N) = -39.16599d$  となる関数である.

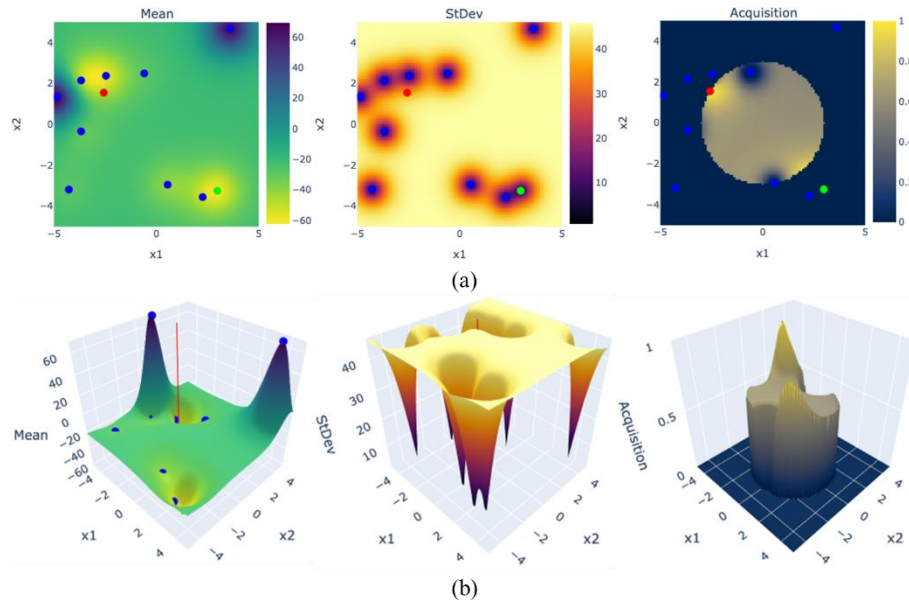
1 つ目の例題として,  $d=1$  のサンプルファイルを BOXVIA に読み込む. **Figure 7.3** に, BO を実行して計算される, 平均関数, 標準偏差, 獲得関数それぞれの分布を可視化した結果を示す. 上部のグラフにおいて, 緑色の線が平均関数を表し, ピンク色の領域が標準偏差の分布を表す. CSV ファイルからインポートしたデータは青い点で, その中で最も良い出力が得られているデータは緑色の点で示される. 下部のグラフは, 0 から 1 の範囲に正規化された獲得関数の分布を表す. グラフ内に示される縦方向の赤い線が, 提案された入力パラメータを意味する. 可視化により, BO は  $x_1 = -3$  付近に最小値があることを予測している一方で, 獲得関数は標準偏差が大きな領域で増加する. この可視化結果から, 入力パラメータが大域探索によって提案されていることが明確に読み取れる.



**Fig. 7.3** Visualized distributions of one-dimensional mean function, standard deviation, and acquisition function.

2つ目の例題として,  $d=2$  のサンプル CSV ファイルを読み込む. この例では, 入力となる 2 種類のパラメータ  $x_1$  と  $x_2$  について, “Constraints”に“ $x_1^2 + x_2^2 - 9$ ”と書くことで,  $x_1^2 + x_2^2 \leq 9$  の制約条件を加える. **Figure 7.4** に, 2D の平均関数, 標準偏差, 獲得関数を 2D ヒートマップグラフ(**Fig. 7.4(a)**)および 3D 表面グラフ(**Fig. 7.4(b)**)で示す. BO によって提案されるデータは, 赤い点または赤線でグラフ内に示される. 制約条件を加えたことで, 条件を満たさない探索領域では獲得関数が強制的に 0 となる. 2D ヒートマップグラフだけでなく, 3D 表面グラフでも可視化を可能としたことで, 分布が有する大小関係を直感的に理解できる.

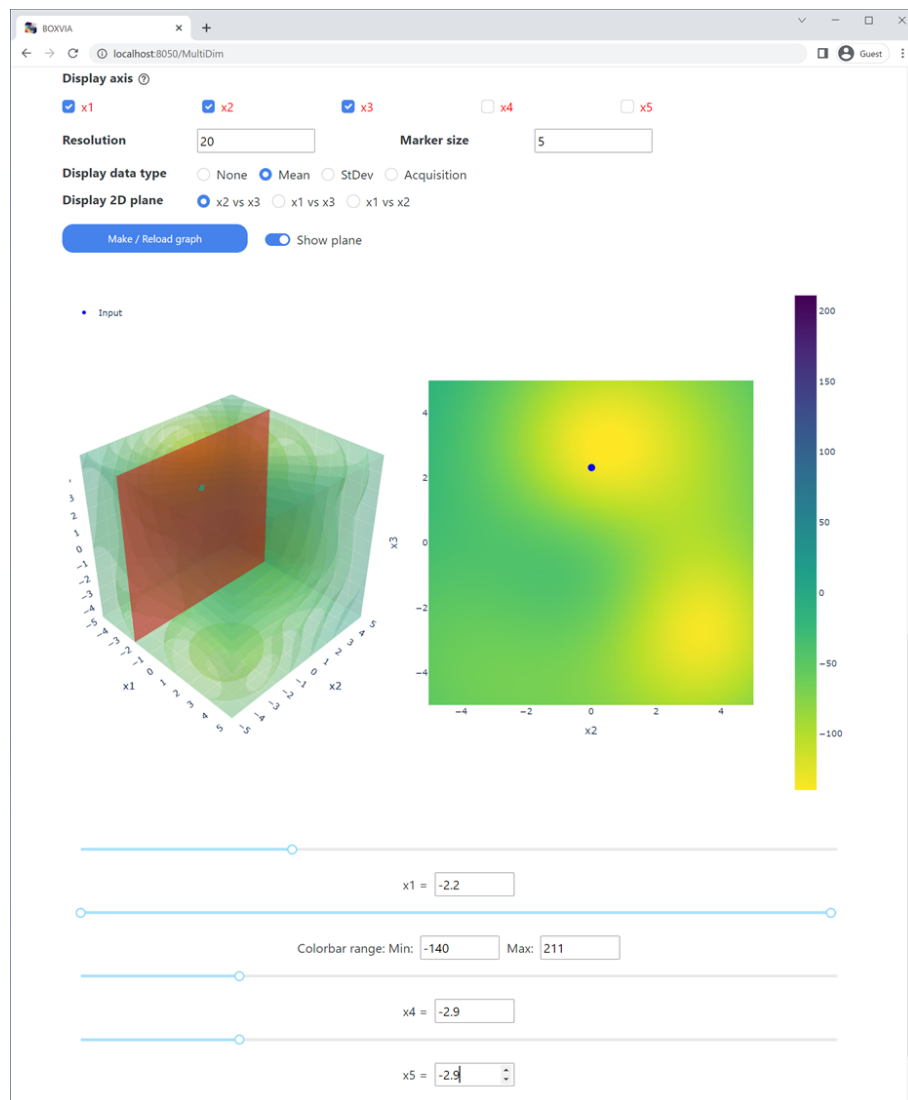




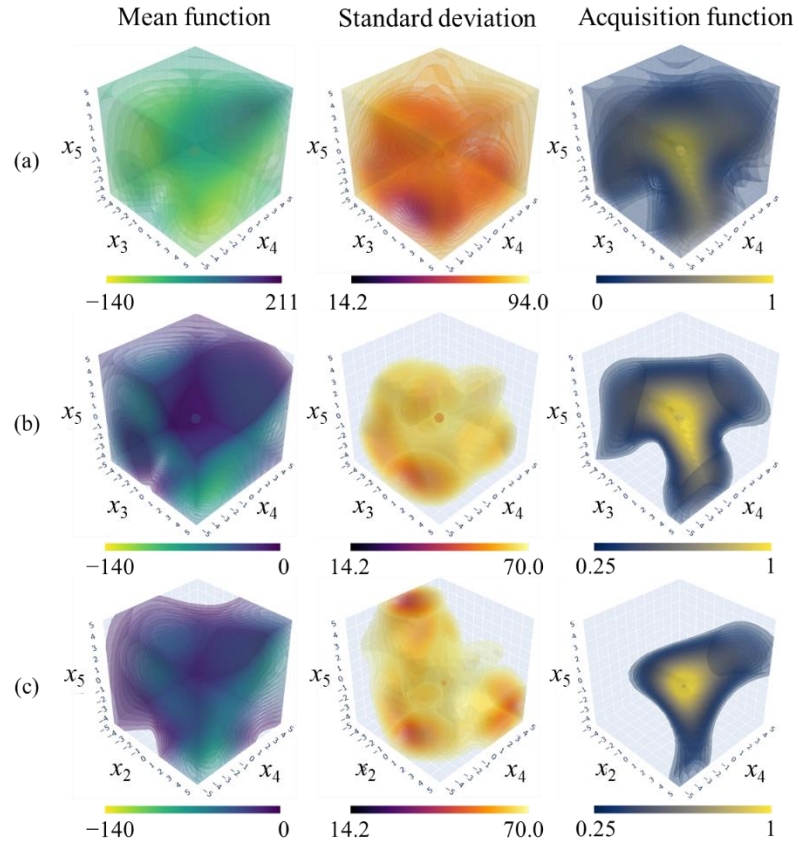
**Fig. 7.4** Distributions of two-dimensional mean function, standard deviation, and acquisition function visualized by BOXVIA. The distributions are graphed as (a) two-dimensional heat maps and (b) three-dimensional surfaces. A constraint is added between the input parameters,  $x_1$  and  $x_2$  as  $x_1^2 + x_2^2 \leq 9$ .

**Figure 7.5** には、読み込む CSV ファイルが  $d=5$  の場合の平均関数の可視化結果の例を示す。“Display axis”で  $x_1, x_2, x_3$  を選択し、グラフ下部のスライダーを調整することで、 $x_4 = x_5 = -2.9$  における  $x_1, x_2, x_3$  を軸として構成される 3D 空間内の平均関数が左側に表示されている。また図の右側には、スライダーで設定された  $x_1 = -2.2$  の断面が示されている。この断面の位置は、左図において赤い平面で示される。

**Figure 7.6** に、提案された入力パラメータが存在する 3D 空間内の平均関数、標準偏差、獲得関数の分布をそれぞれ示す。これらの 3 次元グラフのうち **Fig. 7.6(a)** および **(b)** に示すグラフは、 $x_3, x_4, x_5$  を軸として構成され、**(c)** のグラフは  $x_2, x_4, x_5$  で構成される。**Fig. 7.6(a)** は、“Make / Reload graph” ボタンを押すことで自動的に設定されるカラーバーの範囲で表示されるグラフであり、**Fig. 7.6(b)** は、カラーバーの範囲がスライダーによって任意に設定したことで得られるグラフである。カラーバーの範囲を調整することによって、グラフの分布が閾値処理されるため、ユーザーがより効果的に分布情報を得ることが可能である。例えば、**Fig. 7.6(b)** に示される獲得関数のグラフは、カラーバーの下限值を調整することで、Styblinski–Tang function を最小化すると期待される領域がより明確に表されている。さらに、**Fig. 7.6(c)** に示すように、ユーザーは **Fig. 7.5** に示す GUI を操作することで、グラフを構成する軸の種類を容易に変更することができる。



**Fig. 7.5** Graphical user interface showing a setting menu for visualization and the visualized three- and two- dimensional graphs. Sliders shown under the graphs enable to set a position of the red plane, color bar ranges, and values of axes that are not selected in “Display” axis, respectively.



**Fig. 7.6** Distributions of the mean function, the standard deviation, and the acquisition function visualized by BOXVIA. The distributions in (a) are graphed in the default color range, and those in (b) are thresholded against the distributions in (a) by adjusting the range of the color bar. The distributions in (c) are graphed in a 3D space containing the same suggested input as in (a) and (b) but with differing axes from those in (a) and (b).

## 7.4 期待される社会的影響

MI に代表されるように, BO は様々な分野研究への利用が拡大している. これまで多くの BO ライブラリが開発されてきたが, 特に実験を主体とする研究者にとっては, BO 利用のために必要となるコンピュータの計算環境構築やプログラミングの必要性が BO 利用をためらわせる要因となっている. BOXVIA は, コンピュータの計算環境構築やプログラミングを必要としないため, このような障害を一挙に取り除くことができる. BOXVIA のユーザーは, 1 つの CSV ファイルを用意すれば, その他は簡単なマウスクリック操作といくつかの数値入力のみで BOXVIA の起動から最適化の実行, そして BO の結果の可視化までが可能である. さらに, BOXVIA の可視化機能により, ユーザーは解析されていない入力の分布や, 出力の改善が期待できる入力の位置など, 多くの有用な情報を得ることができる. 特に多変量最適化問題に対して BOXVIA を使用することは, 人間には想像しにくい高次元の目的関数の分布を理解する大きな助けとなる. BOXVIA によって BO 利用が拡大することで, 多様な分野の研究が進展することが期待できる. 例えば, 材料科学分野で近年注目を集める MI において BOXVIA を用いれば, 新しく高性能な材料の迅速な開発を実現するだろう.

## 7.5 結言

BO のさらなる利用拡大を目指して, 世界初の BO 用 GUI アプリケーションである BOXVIA を開発した. 本章では, BOXVIA の仕様と機能を説明し, 使用例を示した. BOXVIA の持つ優れた特徴を以下に示す.

- 1) BOXVIA は, BO を実行するためのコンピュータの環境構築やプログラミングが不要である. そのため, 特に実験を主体とする研究者のように, コンピュータやプログラミングについての専門知識を持たない人でも, BOXVIA を使用することで BO を容易に研究に取り入れることが可能となる.
- 2) BOXVIA により, BO の実行後に得られる平均関数, 標準偏差, 獲得関数を可視化できる. この可視化機能は 3 次元以上の最適化問題にも対応しており, 高次元の BO の実行結果可視化機能は, 世界中に存在する BO 用のライブラリやアプリケーションの中で, BOXVIA のみが有する機能である. BO 実行結果の可視化機能は, 最適化する未知の目的関数についての分布を研究者に提供し, 研究における新たな発見やさらなる進化をもたらすことが期待できる.

BOXVIA の普及により BO を容易に利用可能となれば, 材料科学における MI やプロセスインフォマティクスの研究はさらに拡大し, 高性能な材料が効率的に開発されるようになることが期待できる. さらに, 材料科学分野に限らず, 化学, 応用物理学, ロボット工学, 生命科学, 医学などの様々な研究分野において, BOXVIA は BO による実験効率や実験計画の改善・促進に貢献するだろう.

## 第 8 章

### 結論

本研究では、多結晶材料のマイクロ組織の形成と変化を定量的に予測することを目的として、フェーズフィールド (PF) 法と、データ科学手法であるデータ同化やベイズ最適化 (BO) を融合した、新しい数値計算技術を開発した。PF シミュレーションを用いてマイクロ組織を定量的に予測するために必要となる、実験観察が難しい初期状態や未知の材料パラメータを推定するために、データ同化手法であるアンサンブル 4 次元変分法 (En4DVar) と PF 法を組み合わせた En4DVar-PF モデルを開発した。さらに、より容易に PF モデルと組み合わせることが可能で、かつ計算コストの低いデータ同化手法として、DMC-BO を開発した。そして、開発した En4DVar-PF モデルや DMC-BO を、固相焼結現象とエレクトロマイグレーション (EM) によるボイド移動現象にそれぞれ適用し、多結晶マイクロ組織の形成や変化の予測に対しての有効性を示した。加えて、DMC-BO による推定結果の可視化や、BO の利用拡大を実現するために、BO 用アプリケーション BOXVIA を開発した。以下では、各章で得られた詳細な研究成果を総括する。

第 2 章では、はじめに固相焼結によるマイクロ組織形成を予測するための PF モデルを説明した。続いて、本論文で新しく開発した、多結晶配線内部での EM によるボイド移動を予測するためのマルチフェーズフィールド (MPF) モデルを説明した。その後、En4DVar-PF モデルや DMC-BO の基礎となる、4 次元変分法 (4DVar), En4DVar, BO についての理論をそれぞれ説明した。

第 3 章では、固相焼結 PF シミュレーションを対象として、本論文で開発した En4DVar-PF モデルの検証を行った。検証は双子実験と呼ばれる数値実験により行い、En4DVar-PF モデルを用いて焼結粒子形状と粒界分布の状態と、4 種類の材料パラメータを同時に推定した。検証ではまず、アンサンブル近似の精度を決定するアンサンブルサイズの最適な値を検討し、アンサンブルサイズは 50 が最適であることを示した。次に、En4DVar-PF モデルで推定された状態と材料パラメータの推定精度を検証した。その結果、推定する材料パラメータの初期推定値を決定するガウス分布の標準偏差の大きさに依存することを明らかにした。さらに、時系列観測データの時間間隔と観測データ数が材料パラメータの推定精度に及ぼす影響を調査した。検証の結果、時間間隔が広がり、観測データ数が減少するほど、推定精度が低下することが明らかになった。一方で、初期推定値を決定するための標準偏差を調節することや、用いる観測データの数を増やすことで、観測データの時間間隔が大きくとも、高精度な材料パラメータ推定が可能であることを示した。

第 4 章では、従来手法である 4DVar よりも PF モデルへの実装が容易かつ、第 3 章で使用した En4DVar よりも低い計算コストで状態や材料パラメータの推定が可能な、新しいデータ同

化手法として DMC-BO を開発した。DMC-BO を検証するために、第 3 章と同じく固相焼結を対象として双子実験を行った。はじめに、BO で行われる局所最適化と大域探索のバランスを制御するパラメータが、推定に要する計算コストや推定精度におよぼす影響を調査した。その結果、大域探索を重視するように制御パラメータを設定することで、小さな計算コストで妥当な精度の推定結果が得られることを実証した。また、En4DVar-PF モデルを使用した双子実験を行い、推定精度と計算コストの観点から DMC-BO と En4DVar を比較した。その結果、DMC-BO を用いた推定の計算コストは、En4DVar を用いた推定の計算コストの半分以上となり、その際に得られる材料パラメータの推定精度は、高精度な状態推定が可能である妥当な精度であることを明らかにした。

第 5 章では、本研究で新しく開発した、多結晶配線内の EM によるボイド移動を予測可能な MPF モデルを用いた数値シミュレーションを行った。はじめに、開発した MPF モデルの妥当性検証を行った。単結晶配線内でのボイドの移動速度、粒界におけるボイドの形状変化、粒界をボイドが通過する際のボイドと粒界の形状変化は、いずれも解析解や先行研究と一致した。これにより、開発した MPF モデルを使用したシミュレーション結果は妥当であることを実証した。続いて、配線内の粒界でボイドの体積変化が生じる MPF シミュレーションを行った。パラメトリックスタディの結果から、粒界とボイド表面の原子拡散係数の比が、ボイドが粒界で成長し、断線に至るための重要な因子であることを明らかにした。さらに、実施の大規模集積回路 (LSI) に存在する配線形状を模した系におけるボイド移動シミュレーションを行った。その結果、MPF シミュレーションにより実験で観察された配線の断線位置を定性的に再現した。この結果から、本研究で開発した MPF モデルが、配線の故障位置予測に有効であることを示した。

第 6 章では、5 章で使用した MPF モデルに DMC-BO を適用し、配線が断線に至る前の、配線内粒界分布および初期ボイドの位置を推定した。本章では実験データとして、配線内のボイドを実験観察した走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を用いた。推定の結果得られた粒界分布と初期ボイドの位置を使用した MPF シミュレーションは、実験データと定性的に一致する位置での配線の断線を再現した。ただし、断線に至った際のボイドの形状は、実験データの SEM 像に含まれるボイド形状とは差があり、さらなる改善の余地がある結果となった。したがって、粒界分布を推定するための条件を変更し、ボイドの形状をさらに正確に再現することは今後の課題である。また、本章の DMC-BO を用いた粒界分布推定を通して、従来の 4DVar では推定することが難しいと考えられる、評価関数が局所的にのみ勾配を持つような場合でも、DMC-BO を使用すれば推定を行うことが可能であることを示した。

第 7 章では、世界初の BO 用 GUI アプリケーションとして開発した、BOXVIA について説明した。BOXVIA は、従来の BO 用 Python ライブラリと異なり、コンピュータの計算環境の構築や、プログラミングを必要とせずに BO の実行や結果の可視化が可能である。そのため、コンピュータについての専門知識や、プログラミングについての習熟度に関わらず、誰でも容易に BO が利用可能である。特に、これらのスキルを十分に有していないことから BO の利用を躊躇していた、実験を主体とする研究者に対しては、BOXVIA は BO の利用を促す強い動機

となる。また、BO を実行することで得られる平均関数、標準偏差、獲得関数の分布を、BOXVIA を用いて可視化することで、BO の結果を理解することが容易となる。特に、実際に実験プロセスの最適化を行う上で扱うこととなる高次元の最適化問題に対して BOXVIA を使用し、その結果を可視化することは、BO 結果を理解し、新たな発見を導くための大きな助けとなる。

以上のように、本論文では PF シミュレーションとデータ同化や BO を組み合わせることで、多結晶材料のマイクロ組織の形成や変化の高精度予測を実現するための数値計算技術を開発した。そして各章において、固相焼結および EM によるボイド移動を対象とした数値シミュレーションを行うことで、開発した技術の妥当性と、マイクロ組織予測の定量化への有効性を示した。本研究で開発した En4DVar-PF モデル、DMC-BO、EM によるボイド移動 MPF モデル、そして BOXVIA は、いずれも MI による多結晶材料のマイクロ組織の定量的予測に多大な貢献をもたらすものである。一方で、これらの技術はさらなる発展の余地が残されている。例えば固相焼結を対象としたデータ同化では、未だ数値実験の段階に留まっているため、今後は共同研究グループとの連携により、実実験データを利用した世界初のデータ同化に着手する予定である。また、MPF モデルについても、さらに多様な物理現象を連成したモデルに発展することで、より現実的なシミュレーション結果が得られるようになる。したがって、本研究で開発した数値シミュレーション技術やデータ科学手法を今後さらに発展させることで、固相焼結で作製される多結晶材料の機械的・電氣的・磁氣的特性の向上や、大規模集積回路で使用する多結晶金属配線の信頼性向上のために必要となる、マイクロ組織の制御指針の獲得や、開発プロセスの高速化・省コスト化の実現が期待できる。

## 参考文献

1. 郡司好喜, 鋼の凝固のさせ方と性質. 日本金属学会会報, **21** (1982), pp. 205–209.
2. 吉田英弘, 焼結の基礎 —理論的背景から実際まで— I. さまざまな焼結手法. まてりあ, **58** (2019), pp. 570–575.
3. R. Fornari, *Single Crystals of Electronic Materials: Growth and Properties*. Woodhead Publishing, (2018).
4. S. Jin, R. S. Ruoff, Preparation and uses of large area single crystal metal foils. *APL Materials*, **7** (2019), 100905.
5. 湯川夏夫, 単結晶で作ったタービブレード. 日本結晶学会誌, **14** (1972), pp. 54–60.
6. 才田一幸, 西本和俊, 単結晶合金溶接補修への凝固解析の適用. 溶接学会誌, **76** (2007), pp. 230–242.
7. D. C. Larbalestier, L. D. Cooley, M. O. Rikel, A. A. Polyanskii, J. Jiang, S. Patnaik, X. Y. Cai, D. M. Feldmann, A. Gurevich, A. A. Squitieri, M. T. Naus, C. B. Eom, E. E. Hellstrom, R. J. Cava, K. A. Regan, N. Rogado, M. A. Hayward, T. He, J. S. Slusky, P. Khalifah, K. Inumaru, M. Haas, Strongly linked current flow in polycrystalline forms of the superconductor  $\text{MgB}_2$ . *Nature*, **410** (2001), pp. 186–189.
8. Y. Shimada, A. Yamamoto, Y. Hayashi, K. Kishio, J. Shimoyama, S. Hata, T. J. Konno, The formation of defects and their influence on inter- and intra-granular current in sintered polycrystalline 122 phase Fe-based superconductors. *Superconductor Science and Technology*, **32** (2019), 084003.
9. Y. Slimani, E. Hannachi, F. Ben Azzouz, M. Ben Salem, Impact of planetary ball milling parameters on the microstructure and pinning properties of polycrystalline superconductor  $\text{Y3Ba5Cu8Oy}$ . *Cryogenics*, **92** (2018), pp. 5–12.
10. 渡邊忠雄, 多結晶材料における粒界微細組織の解析と制御. まてりあ, **40** (2001), pp. 617–622.
11. Mannhart, C. C. Tsuei, Limits of the critical current density of polycrystalline high-temperature superconductors based on the current transport properties of single grain boundaries. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, **77** (1989), pp. 53–59.
12. T. Katase, Y. Ishimaru, A. Tsukamoto, H. Hiramatsu, T. Kamiya, K. Tanabe, H. Hideo, Advantageous grain boundaries in iron pnictide superconductors. *Nature Communications*, **2** (2011), pp. 406–409.



13. G. Wang, M. J. Raine, D. P. Hampshire, How resistive must grain boundaries in polycrystalline superconductors be, to limit  $J_c$ ? *Superconductor Science and Technology*, **30** (2017), 104001.
14. A. Das, Z. Fan, Morphological development of solidification structures under forced fluid flow: experimental observation. *Materials Science and Technology*, **19** (2003), pp. 573–580.
15. K. K. Alaneme, E. A. Okotete, Recrystallization mechanisms and microstructure development in emerging metallic materials: A review. *Journal of Science: Advanced Materials and Devices*, **4** (2019), pp. 19–33.
16. T.S. Prithiv, P. Bhuyan, S.K. Pradhan, V. Subramanya Sarma, S. Mandal, A critical evaluation on efficacy of recrystallization vs. strain induced boundary migration in achieving grain boundary engineered microstructure in a Ni-base superalloy. *Acta Materialia*, **146** (2018), pp. 187–201.
17. S.-J. L. Kang, M.-G. Lee, S.-M. An, Microstructural evolution during sintering with control of the interface structure. *Journal of the American Ceramic Society*, **92** (2009), pp. 1464–1471.
18. B. Cai, J. Wang, A. Kao, K. Pericleous, A. B. Phillion, R. C. Atwood, P. D. Lee, 4D synchrotron X-ray tomographic quantification of the transition from cellular to dendrite growth during directional solidification. *Acta Materialia*, **117** (2016), pp. 160–169.
19. Y. Jin, B. Lin, M. Bernacki, G.S. Rohrer, A.D. Rollett, N. Bozzolo, Annealing twin development during recrystallization and grain growth in pure nickel. *Materials Science and Engineering: A*, **597** (2014), pp. 295–303.
20. J. Sun, C. Holzner, H. Bale, M. Tomita, N. Gueninchault, F. Bachmann, E. Lauridsen, T. Inaguma, M. Kimura, 3D crystal orientation mapping of recrystallization in severely cold-rolled pure iron using laboratory diffraction contrast tomography. *ISIJ International*, **60** (2020), pp. 528–533.
21. 小野寺秀博, 阿部太一, 下野昌人, 小山敏幸, 計算材料科学の進展と展望. 鉄と鋼, **100** (2014), pp. 1207–1219.
22. 椿広計, システム科学とデータ科学. 横幹, **14** (2020), pp. 64–69.
23. 岡崎直観, データジャーナリズムとデータ科学. 電子情報通信学会誌, **99** (2016), pp. 339–346.
24. V. Dhar, Data science and prediction. *Communications of the ACM*, **56** (2013), pp. 64–73.
25. W. van der Aalst, Data science in action. In: *Process Mining*. Springer, Berlin, Heidelberg (2016).
26. 出村雅彦, 材料開発における AI・データ科学活用に向けた取り組み. まてりあ, **58** (2019), p. 155.

27. 知京豊裕, 「マテリアルズインフォマティクスの現状と課題」 —海外の動向と日本の挑戦—. 情報知識学会誌, **27** (2017), pp. 297–304.
28. R. Ramprasad, R. Batra, G. Pilania, A. Mannodi-Kanakkithodi, C. Kim, Machine learning in materials informatics: recent applications and prospects. *npj Computational Materials*, **3** (2017) 54.
29. トヨタも挑戦、データ・A I 活用の材料開発「M I」はあまねく浸透するか. 日刊工業新聞 2021 年 4 月 21 日, (<https://newswitch.jp/p/26966> [accessed 8 November 2021]).
30. AI 技術を活用、材料開発を少ない実験回数で実現. EE Times Japan 2021 年 10 月 28 日, (<https://eetimes.itmedia.co.jp/ee/articles/2110/27/news050.html> [accessed 8 November 2021]).
31. S. Wolfram, Statistical mechanics of cellular automata. *Reviews of Modern Physics*, **55** (1983), pp. 601–644.
32. L. B. Kier, P. G. Seybold, C.-K. Cheng, Modeling chemical systems using cellular automata. Springer, Netherlands, (2005).
33. C. P. Robert, G. Casella, Monte Carlo statistical methods. Springer, New York, (1999).
34. D. P. Kroese, T. Brereton, T. Taimre, Z. I. Botev, Why the Monte Carlo method is so important today. *WIREs Computational Statistics*, **6** (2014), pp. 386–392.
35. R. Ding, Z. X. Guo, Microstructural modelling of dynamic recrystallisation using an extended cellular automaton approach. *Computational Materials Science*, **23** (2002), pp.209–218.
36. T. M. Rodgers, J. D. Madison, V. Tikare, Simulation of metal additive manufacturing microstructures using kinetic Monte Carlo. *Computational Materials Science*, **135** (2017), pp. 78–89.
37. X. Wang, A. Atkinson, Combining densification and coarsening in a Cellular Automata-Monte-Carlo simulation of sintering: Methodology and calibration. *Computational Materials Science*, **143** (2018), pp. 338–349.
38. R. Kobayashi, Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth, *Physica D*, **63** (1993), pp. 410–423.
39. A. Karma, Phase-field formulation for quantitative modeling of alloy solidification. *Physical Review Letters*, **87** (2001), 115701.
40. T. Takaki, Phase-field modeling and simulations of dendrite growth. *ISIJ International*, **54** (2014), pp. 437–444.
41. D. Fan, L.-Q. Chen, Computer simulation of grain growth using a continuum field model. *Acta Materialia*, **45** (1997), pp. 611–622.

42. E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe, T. Aoki, Ultra-large-scale phase-field simulation study of ideal grain growth. *npj Computational. Materials*, **3** (2017) 25.
43. Y. U. Wang, Computer modeling and simulation of solid-state sintering: A phase field approach, *Acta Materialia*, **54** (2006), pp. 953–961.
44. F. Adeljawad, D. S. Bolintineanu, A. Cook, H. Brown-Shaklee, C. DiAntonio, D. Kammler, A. Roach, Sintering processes in direct ink write additive manufacturing: A mesoscopic modeling approach, *Acta Materialia* **169** (2019), pp. 60–75.
45. L.-Q. Chen, Phase-field models for microstructure evolution. *Annual Review of Materials Research*, **32** (2002), pp. 113–140.
46. M. Mamivand, M. A. Zaeem, H. E. Kadiri, A review on phase field modeling of martensitic phase transformation. *Computational Materials Science*, **77** (2013), pp. 304–311.
47. S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Aoki, Two-dimensional large-scale phase-field lattice Boltzmann simulation of polycrystalline equiaxed solidification with motion of a massive number of dendrites. *Computational Materials Science*, **178** (2020), 109639.
48. M. J. Borden, C. V. Verhoosel, M. A. Scott, T. J.R. Hughes, C. M. Landis, A phase-field description of dynamic brittle fracture. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, **217–220** (2012), pp. 77–95.
49. C. Tsuyuki, A. Yamanaka, Y. Ogimoto, Phase-field modeling for pH-dependent general and pitting corrosion of iron. *Scientific Reports*, **8** (2018), 12777.
50. H. A. Rowley, S. Baluja, T. Kanade, Neural network-based face detection. *IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence*, **20** (1998), pp. 23–38.
51. G. Biau, E. Scornet, A random forest guided tour. *TEST*, **25** (2016), pp. 197–227.
52. E. Elhamifar, G. Sapiro, R. Vidal, See all by looking at a few: Sparse modeling for finding representative objects. *Proc. of the IEEE Computer Society Conference on Computer Vision and Pattern Recognition*, (2012), pp. 1600–1607.
53. E. H. Ruspini, A new approach to clustering. *Information and Control*, **15** (1969), pp. 22–32.
54. D. T. Larose, C. D. Larose, Discovering Knowledge in Data: An Introduction to Data Mining (Second Edition). John Wiley & Sons, USA, (2014).

55. S. Zhichao, Y. He, T. Ze, Microstructural evolution model of TA15 titanium alloy based on BP neural network method and application in isothermal deformation. *Computational Materials Science*, **50** (2010), pp. 308–318.
56. Y.C. Lin, F.-Q. Nong, X.-M. Chen, D.-D. Chen, M.-S. Chen, Microstructural evolution and constitutive models to predict hot deformation behaviors of a nickel-based superalloy. *Vacuum*, **137** (2017), pp. 104–114.
57. Y. Zhao, S. Koike, R. Nakama, S. Ihara, M. Mitsuhashi, M. Murayama, S. Hata, H. Saito, Five-second STEM dislocation tomography for 300 nm thick specimen assisted by deep-learning-based noise filtering. *Scientific Reports*, **11** (2021), 20720.
58. J. Jung, J. Na, H. K. Park, J. M. Park, G. Kim, S. Lee, H. S. Kim, Super-resolving material microstructure image via deep learning for microstructure characterization and mechanical behavior analysis. *npj computational materials*, **7** (2021), 96.
59. S. M. Azimi, D. Britz, M. Engstler, M. Fritz, F. Mücklich, Advanced steel microstructural classification by deep learning methods. *Scientific Reports*, **8** (2018), 2128.
60. A. Ziletti, D. Kumar, M. Scheffler, L. M. Ghiringhelli, Insightful classification of crystal structures using deep learning, *Nature Communications*, **9** (2018), 2775.
61. K. Takahashi, L. Takahashi, I. Miyazato, Y. Tanaka, Searching for hidden perovskite materials for photovoltaic systems by combining data science and first principle calculations. *ACS Photonics*, **5** (2018), pp. 771–775.
62. E. Brochu, V. M. Cora, N. de Freitas, A tutorial on Bayesian optimization of expensive cost functions, with application to active user modeling and hierarchical reinforcement learning. arXiv:1012.2599v1, (2010).
63. B. Shahriari, K. Swersky, Z. Wang, R. P. Adams, N. de Freitas, Taking the human out of the loop: A review of Bayesian optimization. *Proc. of the IEEE*, **104** (2016), pp. 148–175.
64. M. Yamawaki, M. Ohnishi, S. Ju, J. Shiomi, Multifunctional structural design of graphene thermoelectrics by Bayesian optimization. *Science Advances*, **4** (2018), eaar4192.
65. Y. Zhang, D. W. Apley, W. Chen, Bayesian optimization for materials design with mixed quantitative and qualitative variables. *Scientific Reports*, **10** (2020) 4924.
66. K. Osada, K. Kutsukake, J. Yamamoto, S. Yamashita, T. Kodera, Y. Nagai, T. Horikawa, K. Matsui, I. Takeuchi, T. Ujihara, Adaptive Bayesian optimization for epitaxial growth of Si thin films under various constraints. *Materials Today Communications*, **25** (2020), 101538.

67. S. Subianto, C. Li, D. R. de C. Leal, S. Rana, S. Gupta, R. He, S. Venkatesh, A. Sutti, Optimizing a high-entropy system: software-assisted development of highly hydrophobic surfaces using an amphiphilic polymer. *ACS Omega*, **4** (2019) 15912–15922.
68. K. Terayama, K. Tsuda, R. Tamura. Efficient recommendation tool of materials by an executable file based on machine learning. *Japanese Journal of Applied Physics*, **58** (2019), 098001.
69. J. A. Gombert, A. J. Medford, S. R. Kalidindi, Extracting knowledge from molecular mechanics simulations of grain boundaries using machine learning. *Acta Materialia*, **133** (2017), pp. 100–108.
70. K. A. Babu, T. S. Prithiv, A. Gupta, S. Mandal, Modeling and simulation of dynamic recrystallization in super austenitic stainless steel employing combined cellular automaton, artificial neural network and finite element method. *Computational Materials Science*, **195** (2021), 110482.
71. A. Tran, J. A. Mitchell, L. P. Swiler, T. Wildey, An active learning high-throughput microstructure calibration framework for solving inverse structure–process problems in materials informatics. *Acta Materialia*, **194** (2020), pp. 80–92.
72. S. Goswami, C. Anitescu, S. Chakraborty, T. Rabczuk, Transfer learning enhanced physics informed neural network for phase-field modeling of fracture. *Theoretical and Applied Fracture Mechanics*, **106** (2020), 102447.
73. Z.-H. Shen, J.-J. Wang, J.-Y. Jiang, S. X. Huang, Y.-H. Lin, C.-W. Nan, L.-Q. Chen, Y. Shen, Phase-field modeling and machine learning of electric-thermal-mechanical breakdown of polymer-based dielectrics. *Nature Communications*, **10** (2019), 1843.
74. W. Lahoz, B. Khattatov, R. Ménard, Data Assimilation – Making Sense of Observations, Springer, Berlin, Heidelberg, (2010).
75. The Materials Project, (<https://www.materialsproject.org> [accessed 8 November 2021]).
76. T. Surholt, C. Herzig, Grain boundary self-diffusion in Cu polycrystals of different purity *Acta Materialia*, **45** (1997), pp. 3817–3823
77. B. Schönfelder, D. Wolf, S. R. Phillpot, M. Furtkamp, Molecular dynamics method for the simulation of grain-boundary migration. *Interface Science*, **5** (1997), pp. 245–262.
78. C. N. Singman, Atomic volume and allotropy of the elements. *Journal of Chemical Education*, **61** (1984), pp. 137–142.
79. S. J. Rothman, N. L. Peterson, J. T. Robinson, Isotope effect for self-diffusion in single crystals of silver. *physica status solidi (b)*, **39** (1970), pp. 635–645.

80. G. E. Rhead, Surface self-diffusion and faceting on silver. *Acta Metallurgica*, **11** (1963), pp. 1035–1042.
81. P. Gas, D. L. Beke, J. Bernardino, Grain-boundary diffusion: analysis of the C kinetic regime. *Philosophical Magazine Letters*, **65** (1992), pp. 133–139.
82. H. L. Skriver, N. M. Rosengaard, Surface energy and work function of elemental metals. *Physical Review B*, **46** (1992), pp. 7157–7168.
83. M. C. Inman, H. R. Tipler, Interfacial energy and composition in metals and alloys. *Metallurgical Reviews*, **8** (1963), pp. 105–166.
84. 渡邊忠雄, 結晶粒界の性格決定および表示法, 日本金属学会会報, **19** (1980), pp. 253–259.
85. M. Yin, X. Zheng, J. D. Humphrey, G. E. Karniadakis, Non-invasive inference of thrombus material properties with physics-informed neural networks. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, **375** (2021), 113603.
86. 岡田雄輝, 山中晃徳, 石井秋光, 山本明保, 機械学習を用いた 3 次元固相焼結シミュレーションのパラメータ推定. 電気学会研究会資料, MC 2020(1-14), pp. 11–13.
87. S. Kench, S. J. Cooper, Generating 3D structures from a 2D slice with GAN-based dimensionality expansion. arXiv:2102.07708v1, (2021).
88. K. Sasaki, A. Yamanaka, S. Ito, H. Nagao, Data assimilation for phase-field models based on the ensemble Kalman filter. *Computational Materials Science*, **141** (2018), pp. 141–152.
89. A. Yamanaka, Y. Maeda, K. Sasaki, Ensemble Kalman filter-based data assimilation for three-dimensional multi-phase-field model: Estimation of anisotropic grain boundary properties. *Materials & Design*, **165** (2019), 107577.
90. M. Ohno, Y. Oka, S. Sakane, Y. Shibuta, T. Takaki, Bayesian inference of solid-liquid interfacial properties out of equilibrium. *Physical Review E*, **101** (2020), 052121.
91. A. Yamanaka, K. Takahashi, Data assimilation for three-dimensional phase-field simulation of dendritic solidification using the local ensemble transform Kalman filter. *Materials Today Communications*, **25** (2020), 101331.
92. K. Takahashi, A. Yamanaka, Quantitative three-dimensional phase-field modeling of dendritic solidification coupled with local ensemble transform Kalman filter. *Computational Materials Science*, **190** (2021), 110296.

93. Y. Nagatsuma, M. Ohno, T. Takaki, Y. Shibuta, Bayesian data assimilation of temperature dependence of solid–liquid interfacial properties of nickel. *Nanomaterials*, **11** (2021), 2308.
94. E. Miyoshi, M. Ohno, Y. Shibuta, A. Yamanaka, T. Takaki, Novel estimation method for anisotropic grain boundary properties based on Bayesian data assimilation and phase-field simulation. *Materials & Design*, **210** (2021), 110089.
95. S. Ito, H. Nagao, A. Yamanaka, Y. Tsukada, T. Koyama, M. Kano, J. Inoue, Data assimilation for massive autonomous systems based on a second-order adjoint method. *Physical Review E*, **94** (2016), 043307.
96. S. Ito, H. Nagao, T. Kasuya, J. Inoue, Grain growth prediction based on data assimilation by implementing 4DVar on multi-phase-field model. *Science and Technology of Advanced Materials*, **18** (2017), pp. 857–869.
97. G. Evensen, Sequential data assimilation with a nonlinear quasi-geostrophic model using Monte Carlo methods to forecast error statistics. *Journal of Geophysical Research*, **99** (1994), 10143.
98. G. Evensen, The ensemble Kalman filter: Theoretical formulation and practical implementation. *Ocean Dynamics*. **53** (2003), pp. 343–367.
99. F. Rabier, H. Järvinen, E. Klinker, J.-F. Mahfouf, A. Simmons, The ECMWF operational implementation of four-dimensional variational assimilation. I: Experimental results with simplified physics. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **126** (2000), pp. 1143–1170.
100. T. Tsuyuki, T. Miyoshi, Recent progress of data assimilation methods in meteorology. *Journal of the Meteorological Society of Japan*, **85B** (2007), pp. 331–361.
101. G. Evensen, P. J. van Leeuwen, An ensemble Kalman smoother for nonlinear dynamics. *Monthly Weather Review*, **128** (2000), pp. 1852–1867.
102. M. V. Krymskaya, R. G. Hanea, M. Verlaan, An iterative ensemble Kalman filter for reservoir engineering applications. *Computational Geosciences*, **13** (2009), pp. 235–244.
103. X. Tian, Z. Xie, A. Dai, An ensemble-based explicit four-dimensional variational assimilation method. *Journal of Geophysical Research*, **113** (2008) D21124.
104. Z. Wang, I. M. Navon, F. X. Le Dimet, X. Zou, The second order adjoint analysis: Theory and applications. *Meteorology and Atmospheric Physics*, **50** (1992), pp. 3–20.

105. C. Liu, Q. Xiao, B. Wang, An ensemble-based four-dimensional variational data assimilation scheme. Part I: Technical formulation and preliminary test, *Monthly Weather Review*, **136** (2008), pp. 3363–3373.
106. C. Liu, Q. Xiao, B. Wang, An ensemble-based four-dimensional variational data assimilation scheme. Part II: Observing system simulation experiments with advanced research WRF (ARW), *Monthly Weather Review*, **137** (2009), pp. 1687–1704.
107. R. M. German, *Sintering: From Empirical Observations to Scientific Principles*. Butterworth-Heinemann, Oxford, (2014).
108. E. A. Olevsky, Theory of sintering: From discrete to continuum. *Materials Science and Engineering: R: Reports*, **23** (1998), pp. 41–100.
109. Y. Takano, H. Takeya, H. Fujii, H. Kumakura, T. Hatano, K. Togano, H. Kito and H. Ihara, Superconducting properties of MgB<sub>2</sub> bulk materials prepared by high-pressure sintering. *Applied Physics Letters*, **78** (2001), pp. 2914–2916.
110. S. Tokuta, Y. Shimada, A. Yamamoto, Evolution of intergranular microstructure and critical current properties of polycrystalline Co-doped BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> through high-energy milling. *Superconductor Science and Technology*, **33** (2020), 094010.
111. M. Durazzo, A. M. Saliba-Silva, E. F. Ud Carvalho, H. G. Riella, Remarks on the sintering behavior of UO<sub>2</sub>–Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fuel. *Journal of Nuclear Materials*, **405** (2010), pp. 203–205.
112. S. F. S. Shirazi, S. Gharekhani, M. Mehrali, H. Yarmand, H. S. C. Metselaar, N. A. Kadri, N. A. A. Osman, A review on powder-based additive manufacturing for tissue engineering: selective laser sintering and inkjet 3D printing. *Science and Technology of Advanced Materials*, **16** (2015), 033502.
113. O. Lame, D. Bellet, M. Di Michiel, D. Bouvard, Bulk observation of metal powder sintering by X-ray synchrotron microtomography. *Acta Materialia*, **52** (2004), pp. 977–984.
114. Y. Akada, H. Tatsumi, T. Yamaguchi, A. Hirose, T. Morita, E. Ide, Interfacial bonding mechanism using silver metallo-organic nanoparticles to bulk metals and observation of sintering behavior. *Materials Transactions*, **49** (2009), pp. 1537–1545.
115. M. A. Asoro, D. Kovar, Y. Shao-Horn, L. F. Allard, P. J. Ferreira, Coalescence and sintering of Pt nanoparticles: in situ observation by aberration-corrected HAADF STEM. *Nanotechnology*, **21** (2010), 025701.



116. T. Shimura, Y. Miyazaki, Y. Nakayama, M. Takeguchi, N. Shikazono, Characterization of inter-diffusion phase between gadolinium-doped ceria and yttria-stabilized zirconia during high-temperature sintering by in-situ and ex-situ transmission electron microscopy observations. *Solid State Ionics*, **342** (2019), 115058.
117. S. B. Simonsen, I. Chorkendorff, S. Dahl, M. Skoglundh, J. Sehested, S. Helveg, Direct observations of oxygen-induced platinum nanoparticle ripening studied by in situ TEM. *Journal of the American Chemical Society*, **132** (2010), pp. 7968–7975.
118. D. Bernard, D. Gendron, J.-M. Heintz, S. Bordère, J. Etourneau, First direct 3D visualisation of microstructural evolutions during sintering through X-ray computed microtomography. *Acta Materialia*, **53** (2005), pp. 121–128.
119. S. A. McDonald, C. Holzner, E. M. Lauridsen, P. Reisching, A. P. Merkle, P. J. Withers, Microstructural evolution during sintering of copper particles studied by laboratory diffraction contrast tomography (LabDCT), *Scientific Reports*, **7** (2017), 5251.
120. F. Xu, X. Hu, H. Miao, J.-H. Zhao, In situ investigation of ceramic sintering by synchrotron radiation X-ray computed tomography. *Optics and Lasers in Engineering*, **48** (2010), pp. 1082–1088.
121. K. K. Bodla, S. V. Garimella, Simulated microstructural evolution and design of porous sintered wicks. *Journal of heat transfer*, **136** (2014), 072601.
122. Y. Zhang, X. Xiao, J. Zhang, Kinetic Monte Carlo simulation of sintering behavior of additively manufactured stainless steel powder particles using reconstructed microstructures from synchrotron X-ray microtomography. *Results in Physics*, **13** (2019), 102336.
123. J. Deng, A phase field model of sintering with direction-dependent diffusion. *Materials Transactions*, **53** (2012), pp. 385–389.
124. S. Biswas, D. Schwen, J. Singh, V. Tomar, A study of the evolution of microstructure and consolidation kinetics during sintering using a phase field modeling based approach. *Extreme Mechanics Letters*, **7** (2016), pp. 78–89.
125. S. Biswas, D. Schwen, H. Wang, M. Okuniewski, V. Tomar, Phase field modeling of sintering: Role of grain orientation and anisotropic properties. *Computational Materials Science*, **148** (2018), pp. 307–319.
126. J. Hötzer, M. Seiz, M. Kellner, W. Rheinheimer, B. Nestler, Phase-field simulation of solid state sintering. *Acta Materialia*, **164** (2019), pp. 184–195.

127. K. Asp, J. Ågren, Phase-field simulation of sintering and related phenomena - A vacancy diffusion approach. *Acta Materialia*, **54** (2006), pp. 1241–1248.
128. W. Villanueva, K. Grönhagen, G. Amberg, J. Ågren, Multicomponent and multiphase simulation of liquid-phase sintering. *Computational Materials Science*, **47** (2009), p. 512–520.
129. V. Kumar, Z. Z. Fang, P. C. Fife, Phase field simulations of grain growth during sintering of two unequal-sized particles. *Materials Science & Engineering A*, **528** (2010), pp. 254–259.
130. K. Shinagawa, S. Maki and K. Yokota, Phase-field simulation of platelike grain growth during sintering of alumina. *Journal of the European Ceramic Society*, **34** (2014), pp. 3027–3036.
131. K. Shinagawa, Simulation of grain growth and sintering process by combined phase-field/discrete-element method. *Acta Materialia*, **66** (2014), pp. 360–369.
132. R.-J. Zhang, Z.-W. Chen, W. Fang, X.-H. Qu, Thermodynamic consistent phase field model for sintering process with multiphase powders. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China (English Edition)*, **24** (2014), pp. 783–789.
133. H. Ravash, L. Vanherpe, J. Vleugels, N. Moelans, Three-dimensional phase-field study of grain coarsening and grain shape accommodation in the final stage of liquid-phase sintering. *Journal of the European Ceramic Society*, **37** (2017), pp. 2265–2275.
134. Y. Gao, Z. Liu, Q. Huang, C.-T. Lin, S. Du, Abnormal grain growth of  $\text{UO}_2$  with pores in the final stage of sintering: A phase field study. *Computational Materials Science*, **145** (2018), pp. 24–34.
135. Y. C. Yabansu, V. Rehn, J. Hötzer, B. Nestler, S. R. Kalidindi, Application of Gaussian process autoregressive models for capturing the time evolution of microstructure statistics from phase-field simulations for sintering of polycrystalline ceramics. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, **27** (2019), 084006.
136. I. Greenquist, M. Tonks, L. K. Aagesen, Y. Zhang, Development of a microstructural grand potential-based sintering model. *Computational Materials Science*, **172** (2020), 109288.
137. I. Greenquist, M. Tonks, M. Cooper, D. Andersson, Y. Zhang, Grand potential sintering simulations of doped  $\text{UO}_2$  accident-tolerant fuel concepts. *Journal of Nuclear Materials*, **532** (2020), 152052.
138. H. B. Huntington, Electromigration in metals, In: A.S. Nowick, J.J. Burton (Eds.), *Diffusion in solids: Recent development*, Academic press, New York, (1975).
139. A. Buerke, H. Wendrock, K. Wetzig, Study of electromigration damage in Al interconnect lines inside a SEM, *Crystal Research and Technology*, **35** (2000), pp. 721–730.

140. Interconnect In: The International Technology Roadmap for Semiconductors (ITRS) 2013, (<http://www.itrs2.net/2013-its.html> [accessed 8 November 2021]).
141. A. Adhikari, A. Roy, Experimenting and modeling of catastrophic failure in electromigration-induced resistance degradation for deep submicron dual-damascene copper interconnects, *Solid-State Electronics*, **148** (2018), pp. 7–15.
142. J. S. Huang, A. S. Oates, Y. S. Obeng, W. L. Brown, Asymmetrical critical current density and its influence on electromigration of two-level W-plug interconnection. *Journal of The Electrochemical Society*, **147** (2000), 3840.
143. M. R. Gungor, D. Maroudas, Theoretical analysis of electromigration-induced failure of metallic thin films due to transgranular void propagation. *Journal of Applied Physics*, **85** (1999), pp. 2233–2246.
144. T. Marieb, J. C. Bravman, P. Flinn, D. S. Gradner, M. Madden, Observation of voids induced by mechanical stress and electromigration in passivated Al lines deposited at different purity levels. *Applied Physics Letters*, **64** (1994), pp. 2424–2426.
145. M. A. Meyer, M. Herrmann, E. Langer, E. Zschech, In situ SEM observation of electromigration phenomena in fully embedded copper interconnect structures. *Microelectronic Engineering*, **64** (2002), pp. 375–382.
146. J. He, Z. Suo, T. N. Marieb, J. A. Maiz, Electromigration lifetime and critical void volume. *Applied Physics Letters*, **85** (2004), pp. 4639–4641.
147. C. Witt, V. Calero, C. K. Hu, G. Bonilla, Electromigration: Void dynamics. *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, **16** (2016), pp. 446–451.
148. E. Arzt, O. Kraft, W. D. Nix, J. E. Sanchez Jr, Electromigration failure by shape change of voids in bamboo lines. *Journal of Applied Physics*, **76** (1994), pp. 1563–1571.
149. O. Kraft, E. Arzt, Electromigration mechanisms in conductor lines: Void shape changes and slit-like failure. *Acta Materialia*, **45** (1997), pp. 1599–1611.
150. D. R. Fridline, A. F. Bower, Influence of anisotropic surface diffusivity on electromigration induced void migration and evolution. *Journal of Applied Physics*, **85** (1999), pp. 3168–3174.
151. L. Xia, A. F. Bower, Z. Suo, C. F. Shih, A finite element analysis of the motion and evolution of voids due to strain and electromigration induced surface diffusion. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, **45** (1997), pp. 1473–1493.

152. Y. W. Zhang, A. F. Bower, L. Xia, C. F. Shih, Three dimensional finite element analysis of the evolution of voids and thin films by strain and electromigration induced surface diffusion, *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, **47** (1999), pp. 173–199.
153. A. F. Bower, S. Shankar, A finite element model of electromigration induced void nucleation, growth and evolution in interconnects. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, **15** (2007), pp. 923–940.
154. T. O. Ogurtani, E. E. Oren, Irreversible thermodynamics of triple junctions during the intergranular void motion under the electromigration forces. *International Journal of Solids and Structures*, **42** (2005), pp. 3918–3952.
155. H. Zahedmanesh, O. V. Pedreira, Z. Tőkei, K. Croes, Investigating the electromigration limits of Cu nano-interconnects using a novel hybrid physics-based model. *Journal of Applied Physics*, **126** (2019), 055102.
156. M. Mahadevan, R. M. Bradley, Simulations and theory of electromigration-induced slit formation in unpassivated single-crystal metal lines. *Physical Review B*, **59** (1999), pp. 11037–11046.
157. M. Mahadevan, R. M. Bradley, Phase field model of surface electromigration in single crystal metal thin films. *Physica D*, **126** (1999), pp. 201–213.
158. M. Mahadevan, R. M. Bradley, J.-M. Debierre, Simulations of an electromigration-induced edge instability in single-crystal metal lines. *Europhysics Letters*, **45** (1999), pp. 680–685.
159. D. N. Bhate, A. Kumar, A. F. Bower, Diffuse interface model for electromigration and stress voiding. *Journal of Applied Physics*, **87** (2000), pp. 1712–1721.
160. D. N. Bhate, A. F. Bower, A. Kumar, A phase field model for failure in interconnect lines due to coupled diffusion mechanisms. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, **50** (2002), pp. 2057–2083.
161. D. Kim, W. Lu, Creep flow, diffusion, and electromigration in small scale interconnects. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, **54** (2006), pp. 2554–2567.
162. J. W. Barrett, H. Garcke, R. Nürnberg, A phase field model for the electromigration of intergranular voids. *Interfaces and Free Boundaries*, **9** (2007), pp. 171–210.
163. A. Mukherjee, K. Ankit, M. Selzer, B. Nestler, Electromigration-induced surface drift and slit propagation in polycrystalline interconnects: insights from phase-field simulations. *Physical Review Applied*, **9** (2018), 044004.

164. J. W. Cahn, J. E. Hilliard, Free energy of a nonuniform system. I. Interfacial free energy. *Journal of Chemical Physics*, **28** (1958), pp. 258–267.
165. N. Moelans, B. Blanpain, P. Wollants, An introduction to phase-field modeling of microstructure evolution. *Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry*, **32** (2008), pp. 268–294.
166. S. M. Allen, J. W. Cahn, A microscopic theory for antiphase boundary motion and its application to antiphase domain coarsening. *Acta Metallurgica*, **27** (1979), pp. 1085–1095.
167. G. A. Sullivan, Electromigration and thermal transport in sodium metal, *Physical Review*, **154** (1967), pp. 605–613.
168. A. Lodder, J. P. Dekker, The electromigration force in metallic bulk. *AIP Conference Proceedings*, **418** (1998), pp. 315–328.
169. K. Sasagawa, N. Nakamura, M. Saka, H. Abé, A new approach to calculate atomic flux divergence by electromigration. *Journal of Electronic Packaging*, **120** (1998), pp. 360–366.
170. J. Tiaden, B. Nestler, H. J. Diepers, I. Steinbach, The multiphase-field model with an integrated concept for modelling solute diffusion. *Physica D*, **115** (1998), pp. 73–86.
171. I. Steinbach, F. Pezzolla, B. Nestler, M. Seeßelberg, R. Prieler, G. J. Schmitz, J. L. L. Rezende, A phase field concept for multiphase systems. *Physica D*, **94** (1996), pp. 135–147.
172. I. Steinbach, F. Pezzolla, A generalized field method for multiphase transformations using interface fields. *Physica D*, **134** (1999), pp. 385–393.
173. H. Ceric, S. Selberherr, Electromigration in submicron interconnect features of integrated circuits. *Materials Science and Engineering: R: Reports*, **71** (2011), pp. 53–86.
174. W. W. Mullins, Mass transport at interfaces in single component systems. *Metallurgical and Materials Transactions A*, **26A** (1995), pp. 1917–1929.
175. P. S. Ho, Motion of inclusion by a direct current and a temperature gradient. *Journal of Applied Physics*, **41** (1970), pp. 64–68.
176. A. F. Bower, E. Wininger, A two-dimensional finite element method for simulating the constitutive response and microstructure of polycrystals during high temperature plastic deformation. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, **52** (2004), pp. 1289–1317.
177. D. Young, Iterative methods for solving partial difference equations of elliptic type. *Transactions of the American Mathematical Society*, **76** (1954), pp. 92–111.

178. I. J. Myung, Tutorial on maximum likelihood estimation. *Journal of Mathematical Psychology*, **47** (2003), pp. 90–100.
179. C. E. Rasmussen, C. K. I. Williams, Gaussian Processes for Machine Learning, MIT Press, Cambridge, Massachusetts, London, England, (2006).
180. J. Chang, P. Nikolaev, J. Carpena-Núñez, R. Rao, K. Decker, A. E. Islam, J. Kim, M. A. Pitt, J. I. Myung, B. Maruyama, Efficient closed-loop maximization of carbon nanotube growth rate using Bayesian optimization. *Scientific Reports*, **10** (2020), 9040.
181. A. Foster, M. Jankowiak, E. Bingham, P. Horsfall, Y. W. The, T. Rainforth, N. Goodman, Variational Bayesian optimal experimental design. arXiv:1903.05480v3, (2020).
182. Y. Morita, S. Rezaeiravesh, N. Tabatabaei, R. Vinuesa, K. Fukagata, P. Schlatter, Applying Bayesian optimization with Gaussian process regression to computational fluid dynamics problems. arXiv:2101.09985v1, (2021).
183. D. R. Jones, M. Schonlau, W. J. Welch, Efficient global optimization of expensive black-box functions. *Journal of Global. Optimization*, **13** (1998), pp. 455–492.
184. E. Simon, L. Bertino, Application of the Gaussian anamorphosis to assimilation in a 3-D coupled physical-ecosystem model of the North Atlantic with the EnKF: A twin experiment. *Ocean Science*, **5** (2009), pp. 495–510.
185. J.-S. Kang, E. Kalnay, J. Liu, I. Fung, T. Miyoshi, K. Ide, “Variable localization” in an ensemble Kalman filter: Application to the carbon cycle data assimilation. *Journal of Geophysical Research*, **116** (2011), D09110
186. Y. Wang, C. L. Lin, J. D. Miller, 3D image segmentation for analysis of multisize particles in a packed particle bed. *Powder Technology*, **301** (2016), pp. 160–168.
187. J. C. Lin, C. Y. Wang, Effect of surface properties of silver powder on the sintering of its thick-film conductor. *Materials Chemistry and Physics*, **45** (1996), pp. 253–261.
188. X. G. Zhou, W. K. Yuan, Modeling silver catalyst sintering and epoxidation selectivity evolution in ethylene oxidation. *Chemical. Engineering Science*, **59** (2004), pp. 1723–1731.
189. MPI Forum, (<https://www.mpi-forum.org> [accessed 8 November 2021]).
190. CUDA Toolkit, (<https://developer.nvidia.com/cuda-toolkit> [accessed 8 November 2021]).
191. GPy, GPy: A Gaussian process framework in python, (<http://github.com/SheffieldML/GPy> [accessed 8 November 2021]).

192. The GPyOpt authors, GPyOpt: A Bayesian optimization framework in Python, (<https://github.com/SheffieldML/GPyOpt> [accessed 8 November 2021]).
193. J. P. Dekker, A. Lodder, J. van Ek, Theory for the electromigration wind force in dilute alloys. *Physical Review B*, **56** (1997), pp. 12167–12177.
194. 日本金属学会, 改訂 4 版 金属データブック, 丸善株式会社, (2004), pp. 8–9.
195. R.L. de Orió, H. Ceric, S. Selberherr, Physically based models of electromigration: From Black's equation to modern TCAD models. *Microelectronics Reliability*, **50** (2010), pp. 775–789.
196. Z. Suo, W. Wang, M. Yang, Electromigration instability: Transgranular slits in interconnects. *Applied Physics Letters*, **64** (1994), pp. 1944–1946.
197. W. Wang, Z. Suo, T.-H. Hao, A simulation of electromigration-induced transgranular slits. *Journal of Applied Physics*, **79** (1996), pp. 2394–2403.
198. W. Yang, W. Wang, Z. Suo, Cavity and dislocation instability due to electric current. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, **42** (1994), pp. 897–911.
199. L. Makkonen, Young's equation revisited. *Journal of Physics: Condensed Matter*, **28** (2016), 135001.
200. N. Moelans, B. Blanpain, P. Wollants, Pinning effect of second-phase particles on grain growth in polycrystalline films studied by 3-D phase field simulations, *Acta Materialia*, **55** (2007), pp. 2173–2182.
201. 杉井寿博, 中村友二, サブ 100nm 世代のトランジスタと多層配線技術, *Fujitsu* **52** (2001), pp. 374–384.
202. R. Galand, G. Brunetti, L. Arnaud, J.-L. Rouvière, L. Clément, P. Waltz, Y. Wouters, Microstructural void environment characterization by electron imaging in 45 nm technology node to link electromigration and copper microstructure. *Microelectronic Engineering*, **106** (2013), pp. 168–171.
203. Y.-W. Chang, Y. Cheng, F. Xu, L. Helfen, T. Tian, M. D. Michiel, C. Chen, K.-N. Tu, T. Baumbach, Study of electromigration-induced formation of discrete voids in flip-chip solder joints by in-situ 3D laminography observation and finite-element modeling. *Acta Materialia*, **117** (2016), pp. 100–110.
204. C. W. Chang, Z.-S. Choi, C. V. Thompson, C. L. Gan, K. L. Pey, W. K. Choi, N. Hwang, Electromigration resistance in a short three-contact interconnect tree. *Journal of Applied Physics*, **99** (2006), 094505.

205. OpenCV, (<https://opencv.org> [accessed 8 November 2021]).
206. Z. Wang, F. Hutter, M. Zoghi, D. Matheson, N. de Freitas, Bayesian optimization in a billion dimensions via random embeddings. *Journal of Artificial Intelligence Research*, **55** (2016), pp. 361–387.
207. R. Moriconi, M. P. Deisenroth, K. S. S. Kumar, High-dimensional Bayesian optimization using low-dimensional feature spaces. *Machine Learning*, **109** (2020), pp. 1925–1943.
208. R. Tran, Z. Xu, B. Radhakrishnan, D. Winston, W. Sun, K. A. Persson, S. P. Ong, Surface energies of elemental crystals. *Scientific Data*, **3** (2016), 160080.
209. F. Nogueira, Bayesian Optimization: Open source constrained global optimization tool for Python, (<https://github.com/fmfn/BayesianOptimization> [accessed 10 November 2021]).
210. N. Knudde, J. van der Herten, T. Dhaene, I. Couckuyt, GPflowOpt: A Bayesian optimization library using TensorFlow. arXiv:1711.03845v1, (2017).
211. M. Balandat, B. Karrer, D.R. Jiang, S. Daulton, B. Letham, A. G. Wilson, E. Bakshy, BoTorch: A framework for efficient Monte-Carlo Bayesian optimization. arXiv:1910.06403v3, (2020).
212. J. Jiménez, J. Ginebra, pyGPGO: Bayesian optimization for Python. *Journal of Open Source Software*, **2** (2017), 431.
213. T. Ueno, T. D. Rhone, Z. Hou, T. Mizoguchi, K. Tsuda, COMBO: An efficient Bayesian optimization library for materials science. *Materials Discovery*, **4** (2016), pp. 18–21.
214. J. Kim, S. Choi, BayesO: A Bayesian optimization framework in Python, (<http://bayeso.org> [accessed 10 November 2021]).
215. Plotly, Dash Python user guide, (<https://dash.plotly.com> [accessed 10 November 2021]).
216. S. Hossain, Visualization of bioinformatics data with dash bio, *Proceedings of the 18th Python in Science Conference*, (2019), pp. 126–133.
217. PyInstaller Development Team, Pyinstaller, (<http://www.pyinstaller.org> [accessed 10 November 2021]).
218. J. Gonzalez, Z. Dai, P. Hennig, N. Lawrence, Batch Bayesian optimization via local penalization. *Proceedings of the 19th International Conference on Artificial Intelligence and Statistics*, **51** (2016), pp. 648–657.



219. G. de Ath, R. M. Everson, A. A. M Rahat, J. E. Fieldsend, Greed is Good: Exploration and exploitation trade-offs in Bayesian optimization. *ACM Transactions on Evolutionary Learning and Optimization*, **1** (2021), pp. 1–22.
220. Z.-M. Gao, J. Zhao, S.-R. Li, Y.-R. Hu, The improved mayfly optimization algorithm. *Journal of Physics: Conference Series*, **1684** (2020), 012077.

## 関連学術論文および学術講演

### (1) 学術論文

#### 第 3 章

- [A. Ishii](#), A. Yamanaka, E. Miyoshi, Y. Okada, A. Yamamoto, Estimation of solid-state sintering and material parameters using phase-field modeling and ensemble four-dimensional variational method. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, **29** (2021), 065012.

#### 第 4 章

- [A. Ishii](#), A. Yamanaka, E. Miyoshi, A. Yamamoto, Efficient estimation of material parameters using DMC-BO: Application to phase-field simulation of solid-state sintering. *Materials Today Communications*, **30** (2022), 103089.

#### 第 5 章

- [A. Ishii](#), A. Yamanaka, Multi-phase-field modelling of electromigration-induced void migration in interconnect lines having bamboo structures. *Computational Materials Science*, **184** (2020), 109848.

#### 第 7 章

- [A. Ishii](#), R. Kamijyo, A. Yamanaka, A. Yamamoto, BOXVIA: Bayesian optimization executable and visualizable application. *SoftwareX*, **18** (2022), 101019.

### (2) 国際学術講演

- [A. Ishii](#), A. Yamanaka, Multi-phase-field simulation of electromigration in polycrystalline interconnect line. TMS 2019 Annual Meeting & Exhibition, L-4, San Antonio, Texas (USA), March 2019.
- [A. Ishii](#), A. Yamanaka, Multi-phase-field modelling of void migration caused by electromigration in bamboo interconnect line. The 4th International Symposium on Phase-Field Modelling in Materials Science (PF19), XII-5, Bochum (Germany), July 2019.
- Y. Okada, A. Yamamoto, [A. Ishii](#), A. Yamanaka, 3D phase-field modeling of grain-boundary Formation during Solid-State Sintering, The 11th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC), 2P-16, Ibaraki (Japan), July 2019.

- Y. Okada, S. Tokuta, Y. Shimada, A. Ishii, A. Yamanaka, Akiyasu Yamamoto, A comparative study of experiments and simulations on grain-boundary formation of polycrystalline Ba122 phase iron-based superconductors, 2019 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, Massachusetts (USA), December 2019.
- A. Yamanaka, A. Ishii, Y. Okada, Y. Shimada, A. Yamamoto, Material parameter estimation for phase-field simulation of solid-state sintering using data assimilation, Materials Research Meeting (MRM) 2019, B1-12-P20, Yokohama (Japan), December 2019.
- Y. Okada, A. Yamamoto, A. Ishii, A. Yamanaka, 3D Phase-Field Modeling of Solid-State Sintering: The Diffusion Mechanism Dependence of Grain-Boundary Formation, Materials Research Meeting (MRM) 2019, B1-12-P05, Yokohama (Japan), December 2019.
- A. Ishii, A. Yamanaka, Y. Okada, A. Yamamoto, Large-scale phase-field simulation of solid-state sintering in polycrystalline superconducting materials using parallel computing. Asian Pacific Congress on Computational Mechanics (APCOM) 2019, 0375, Taipei (Taiwan), December 2019.
- A. Yamamoto, S. Tokuta, T. Obara, Y. Okada, A. Ishii, A. Yamanaka, Y. Shimada, S. Hata, K. Iida, Understanding routes for controlling inter- and intra-granular structure of polycrystalline Ba122 superconducting materials, 10th ACASC/2nd Asian ICMC/CSSJ Joint Conference, 8B2-4, Okinawa (Japan), January 2020.
- A. Yamamoto, S. Tokuta, Y. Hasegawa, R. Fujii, Y. Okada, Y. Shimada, H. Saito, S. Hata, A. Ishii, A. Yamanaka, K. Iida, Recent progress on the development of K-doped Ba122 bulk superconductors, 33rd International Symposium on Superconductivity, WB5-1-INV, Ibaraki (Japan), December 2020.
- A. Ishii, A. Yamanaka, Y. Okada, A. Yamamoto, Phase-field simulation of solid-state sintering for predicting microstructural evolution in polycrystalline bulk superconducting material. 14th World Congress in Computational Mechanics (WCCM) and ECCOMAS Congress, 3928, Virtual, January 2021.
- A. Ishii, A. Yamanaka, Y. Okada, A. Yamamoto, Bayesian Data Assimilation for Phase-field Simulation of Solid-state Sintering. TMS2021 Virtual Annual Meeting & Exhibition, Virtual, March 2021.
- A. Ishii, A. Yamanaka, E. Miyoshi, A. Yamamoto, Four-dimensional Variational Method coupled with Bayesian Optimization for Phase-field Simulation of Solid-state Sintering. Materials Research Meeting (MRM) 2021, A4-O3-02, Yokohama (Japan), December 2021.

- Y. Okada, A. Ishii, A. Yamanaka, H. Saito, S. Hata, A. Yamamoto, Advanced microstructure formation modeling by machine learned phase field simulation using time-series observation data. Materials Research Meeting (MRM) 2021, A4-PV21-16, Yokohama (Japan), December 2021.
- S. Tokuta, Y. Hasegawa, Y. Okada, A. Ishii, A. Yamanaka, Y. Shimada, S. Hata, A. Yamamoto, Process machine learning of iron-based superconducting polycrystalline bulk permanent magnets. Materials Research Meeting (MRM) 2021, A4-O7-04, Yokohama (Japan), December 2021.

### (3) 国内学術講演

- 石井秋光, 山中晃徳, 加藤光章, 久國陽介, 廣畑賢治, エレクトロマイグレーションによるボイド移動のマルチフェーズフィールドモデリング, 日本計算工学会 第 23 回計算工学講演会, B-03-03, ウィンクあいち (愛知), 2018 年 6 月.
- 石井秋光, 山中晃徳, バンブー構造配線におけるエレクトロマイグレーションによるボイド移動の 3 次元シミュレーション手法の開発, 日本機械学会 第 31 回計算力学講演会, 091, 徳島大学 (徳島), 2018 年 11 月.
- 石井秋光, 山中晃徳, L 字型銅配線におけるエレクトロマイグレーションによるボイド移動のマルチフェーズフィールドシミュレーション, 日本計算工学会 第 24 回計算工学講演会, F-13-05, ソニックシティ (埼玉), 2019 年 5 月.
- 石井秋光, 山中晃徳, 岡田雄輝, 山本明保, 多結晶型超伝導材料における固相焼結過程の材料組織形成の 3 次元フェーズフィールドシミュレーション, 日本機械学会 第 32 回計算力学講演会, 034, 東洋大学 (埼玉), 2019 年 9 月.
- 岡田雄輝, 山中晃徳, 石井秋光, 山本明保, フェーズフィールド法による焼結粒界形成の拡散機構依存性の検討, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 19p-C213-1, 北海道大学 (北海道), 2019 年 9 月.
- 石井秋光, 山中晃徳, 岡田雄輝, 山本明保, 多結晶型超伝導材料の微細組織形成予測のための固相焼結フェーズフィールドシミュレーション, 日本計算工学会 第 25 回計算工学講演会, 新型コロナウイルスの影響により第 25 回計算工学講演会論文集への掲載のみ, 2020 年 6 月.
- 岡田雄輝, 山中晃徳, 石井秋光, 山本明保, 斉藤光, 波多總, *in situ* 観察とフェーズフィールド法による固相焼結過程の比較研究, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, 9p-Z27-4, オンライン, 2020 年 9 月.

- 岡田雄輝, 山中晃徳, 石井秋光, 山本明保, 機械学習を用いた 3 次元固相焼結シミュレーションのパラメータ推定, 電気学会 金属・セラミックス/超電導機器合同 若手研究会「金属・セラミックスセミナー」, MC-20-003, オンライン, 2020 年 11 月.
- 徳田進之助, 長谷川友大, 藤井陸太, 岡田雄輝, 石井秋光, 山中晃徳, 嶋田雄介, 波多總, 山本明保, 機械学習を活用した K ドープ Ba122 多結晶バルクの合成プロセスの検討, 2020 年度秋季 第 100 回低温工学・超電導学会研究発表会, 3C-p04, 京都大学 (京都), 2020 年 12 月.
- 菊池慎次郎, 長谷川友大, 徳田進之介, 石井秋光, 山中晃徳, 山本明保, ベイズ最適化を用いた高純度 P ドープ Ba122 バルク超伝導体の合成, 電気学会 金属・セラミックス/超電導機器合同 若手研究会「金属・セラミックスセミナー」, MC-21-014, ちよだプラットフォームスクエア (東京), 2021 年 12 月.

#### (4) 特許

- 山中晃徳, 石井秋光, データ同化装置、データ同化方法、データ同化プログラム、及びデータ同化システム, 日本, 特願 2021-150483, 2021 年 9 月 15 日, 出願中.

#### (5) 各種受賞

- 日本機械学会 第 32 回計算力学講演会, 日本機械学会若手優秀講演フェロー賞受賞
- 日本機械学会 第 32 回計算力学講演会, Phase-Field Student Award 受賞

## 謝辞

本研究は、著者が東京農工大学大学院工学府機械システム工学専攻に在学中に、本大学大学院工学研究院先端機械システム部門 山中晃徳教授のご指導のもとで行いました。山中晃徳教授には、研究の遂行と論文の作成にあたり綿密なご指導ご鞭撻を賜るとともに、学部時代から博士後期課程に至るまで、終始素晴らしい研究環境と成果発表の機会をいただきましたことに、深く感謝申し上げます。

また、ご多忙の中にも関わらず、本論文の審査および貴重なご教示を与えてくださった、本大学大学院工学研究院 先端機械システム部門 桑原利彦教授、小笠原俊夫教授、笹原弘之教授、高田智史准教授および先端物理工学部門 山本明保准教授に、厚くお礼申し上げます。

本研究は、戦略的創造研究推進事業 (CREST) 革新材料開発領域 「超伝導インフオマティクスに基づく多結晶型超伝導材料・磁石の開発」の一環として行われ、研究遂行にあたり多くの支援やご助言をいただきました。研究チームのリーダーである山本明保准教授をはじめ、九州大学 波多總教授、斉藤光准教授、名古屋大学 飯田和昌准教授、畑野敬史助教、東北大学 金属材料研究所 嶋田雄介助教および共同で研究に取り組んだ学生の皆様に、心から感謝致します。

本研究は、2021 年度においては、日本学術振興会特別研究員 DC2 に対する科学研究費補助金 (特別研究員奨励費) の援助のもとで行われました。ここに記して謝意を表します。

本大学大学院工学研究院 先端機械システム部門 三好英輔助教には、研究を遂行する中で多くのご助言をいただきましたことに、深く感謝いたします。また、これまでに共に研究室生活を過ごし、支えてくださった山中研究室の皆さまには、この場を借りて感謝の意を表します。

最後になりますが、大学での長きにわたる研究活動に、多大なる理解と支援を賜りました両親に感謝と御礼を申し上げ、謝辞に代えさせていただきます。

2022 年 3 月  
東京農工大学大学院工学府  
機械システム工学専攻

石井秋光