HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	フェーズフィールド・シミュレーションによる凝固組織解析の進展
Author(s)	大野, 宗一
Citation	まてりあ, 53(10), 458-461 https://doi.org/10.2320/materia.53.458
Issue Date	2014-10
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/75375
Type	journal article
File Information	materia 53(10) 458.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

フェーズフィールド・シミュレーションによる凝固組織解析の進展

大野宗一*

1. はじめに

凝固組織の形成過程を理解し，高精度に制御することは，鋳造・凝固の分野における古くからの重要課題である．特に近年では，様々な場面で，高度な凝固組織制御法の発展に対する期待と要求が高まっている．しかしながら，凝固は，溶質拡散，熱拡散，液相中の流動などが関与するマルチフィジックスの現象であり，複数の不均一場のダイナミックスと組織との関係を実験のみから解析することが一般には難しく，理論によって取り扱える範囲も限られる．したがって，シミュレーション研究がこの分野の発展の一翼を担ってきた[1]．

凝固組織をシミュレートする手法として，front tracking method[2], boundary integral method[3], cellular automaton method[4]，そしてフェーズフィールド法[5]–[11]などが発展してきた．これらの中でも，フェーズフィールド法は，計算アルゴリズムが単純で，多種の現象への適用性や拡張性が高いことから，最も注目され，最も高度化されてきた手法の一つである．しかし，一口にフェーズフィールド法といっても，この手法の応用範囲は，凝固の他，粒成長，拡散型および無拡散型の固相変態，規則—不規則相転移，そして転位ダイナミックスなど，多岐にわたり[9]–[11]，これらの対象に応じて手法の発展段階は異なる．例えば，パラメーター・フィッティングによって実験結果を模擬するという段階のものもあれば，現象論に起因する任意性を排除し，測定可能な物性値のみを用いて一意的な結果を算出できる高度なモデルもある．凝固分野のフェーズフィールド法は後者の段階まで進んでいる．その高度な手法は，定量的フェーズフィールド法と呼ばれる．本稿では，定量的フェーズフィールド法を用いた解析例を紹介する．

2. 定量的フェーズフィールド法

組織形成モデリングにおける中心的課題の一つは，界面移動の記述である．界面移動には，(1)バルク相中の熱・溶質拡散，(2)界面移動に伴うエネルギーおよび質量の保存則，そして(3)Gibbs–Thomson 効果が関与する．これらの物理を考慮して界面移動を追跡する問題を，自由境界問題と呼ぶ．Ivantsov の解，組成的過冷却理論，Mullins–Sekerka の摂動論やミクロ偏析モデルなどの解析解や理論[12]は，凝固分野において重要な役割を果たしているが，これらは上記(1)–(3)の関係式(の一部)に近似や仮定を導入して導かれたものに相当する．したがって，自由境界問題を望みの条件下で解くことが，凝固組織シミュレーションにおける主たる課題となる．

凝固分野のフェーズフィールド法は，自由境界問題を解くための数値計算手法として発展してきた．この手法は，Kobayashi によるデンドライト成長のシミュレーション[13][14]を契機に，現在までに多くの研究者によって発展と応用が進められてきた．Wheeler, Boettinger, McFadden らによる合金凝固のモデル(WBM モデル)[15]，Kim, Kim, Suzuki よる界面物性と濃度場のデカップリングを可能にした合金凝固のモデル(KKS モデル)[16]，Steinbach らによる界面三重点のエネルギー・バランスを再現する多相凝固のモデル(マルチ・フェーズフィールド・モデル)[17]などがこの手法の発展において重要な役割を果たしてきた．そして，Karma らは，純物質凝固を対象に thin–interface limit に基づくモデルを提案した[18]．この thin–interface limit に基づくモデルが定量的フェーズフィールド法と呼ばれるものであり，二元系合金[19]や多元系合金[20]における単相凝固のモデル，さらに多相凝固のモデル[21]へと拡張されてきた．ただし，これらの定量的モデルは，固相拡散が無視できる系のみに適用可能であり，平衡凝固が再現できない，ミクロ偏析が予測できない，固相/固相界面の移動が扱えない，といった欠点があった．そこで，著者らは固相拡散を考慮した定量的モデルを開発した[22]–[24]．では，なぜこの定量的モデルが重要なのかを次に簡単に説明する．

フェーズフィールド法は，diffuse interface に基づいて組織の時間変化を計算する．つまり，この手法において，界面は sharp ではなく有限の幅をもっており，その有限の界面幅のもとで組織形成がモデリングされる．この際，フェーズフ

* 北海道大学准教授；大学院工学研究院(〒060–8628 札幌市北区北13条西 8 丁目)
Advances in Phase–field Simulation of Solidification Microstructure; Munekazu Ohno(Faculty of Engineering, Hokkaido University, Sapporo)
Keywords: *phase–field model, solidification, microstructure, dendrite, microsegregation*
2014年 5 月29日受理[doi:10.2320/materia.53.458]

ィールド法は現象論であるために，係数の数や種類，そして関数形の選び方に自由度，または任意性が生じる．そのような任意性は，この手法の方程式と，良く知られた物理法則との整合性をもとに排除することになる．その良く知られた物理法則というのが，上記の自由境界問題における関係式である．従来のモデルは，界面幅が0の極限（sharp−interface limit）において，その解が自由境界問題の解と一致するよう定式化されている．しかし，この手法において界面幅は有限である．特に，計算コストの観点から界面幅は任意の値に設定される．すなわち，従来のモデルの計算結果は，自由境界問題の解と完全には一致しない．この致命的な問題を解決したのが，定量的モデルであり，このモデルは，有限の界面幅において，自由境界問題と符合する一意的な結果を算出する．そして，このモデルはフィッティング・パラメーターを必要とせず，測定可能な物性値のみでシミュレーションを可能にする．その具体的な方程式等の詳細は，文献（10）や（11）などを参照していただきたい．

3. 凝固組織の解析例

⑴ デンドライト成長過程における定量的フェーズフィールド法の精度

まず，定量的モデルと従来のモデルの結果を比較し，定量的モデルの精度について議論する．**図1**は，定量的モデルによるデンドライト成長の計算結果である．紙面の制約のため，詳しい計算条件を記さないが，二元系合金の等温凝固を計算したものである．優先成長方向（〈100〉）にデンドライトが成長し，複雑形態の組織が形成している．既に述べたように，このような複雑形態はバルク中の拡散と界面移動に伴う溶質濃度の保存則，そしてGibbs−Thomson効果の結果として生じる．したがって，シミュレーションにおいてこれらの関係が正しく成立していなければ，当然，その結果に妥当性があるとはいえない．**図2**は，デンドライト先端の界面におけるGibbs−Thomson効果の誤差を算出したものである．横軸は計算に用いた界面幅に相当し，キャピラリー長 d_0 で無次元化している．なお，2次元計算でも3次元計算でも同様の傾向が示されることから，ここには2次元計算の結果を示した．黒色のプロットが定量的モデルの結果であり，白色のプロットは従来のモデルの計算結果である．従来のモデルでは，Gibbs−Thomson効果に誤差が生じ，その大きさは界面幅に依存している．そして，ここには示さないが，界面の移動速度，界面形状，濃度プロファイルも同様に界面幅に依存してしまう．既に述べたように，フェーズフィールド法においては，界面幅は任意の値に設定される．つまり，従来のモデルには，計算結果の一意性が欠如している．たとえ，高精度な物性値を用い，プロセスの境界条件を適切に設定できたとしても，従来のモデルでは定量的に意味のある結果を算出することができない．これに対し，定量的モデルでは，解の一意性が保証されている．図2において，定量的モデルでは，どの界面幅においてもGibbs−Thomson効果の関係式が高精度に成立していることがわかる．そして，界面の移動速度，界面形状，濃度プロファイルもまた界面幅に依存しない．つまり，与えられた物性値・境界条件のもとで，定量的に意味のある一意的な結果を算出できる．この事実こそ，定量的モデルが，凝固組織シミュレーション法の主流になりつつある所以である．

なお，単純な差分方程式による数値計算を考えると，3次元フェーズフィールド・シミュレーションの計算コストは界面幅の−5乗に比例する．例えば，界面幅を3倍大きくすると，計算コストは，約1/240倍まで減少する．定量的モデルの界面幅をどこまで大きく設定できるのかについては，現在のところ明確な基準が求められていないが，著者の経験上，組織形成中に現れる最小の界面曲率半径よりも（定数倍だけ）小さく設定する限り，高精度な結果を算出する．

⑵ ミクロ偏析の解析

著者らが開発した固相拡散を考慮した定量的モデル[22)−24)]によって，包晶反応などの固相中の界面移動が伴う現象やミクロ偏析の解析が可能になった．ここでは，ミクロ偏析の解析例を紹介する．

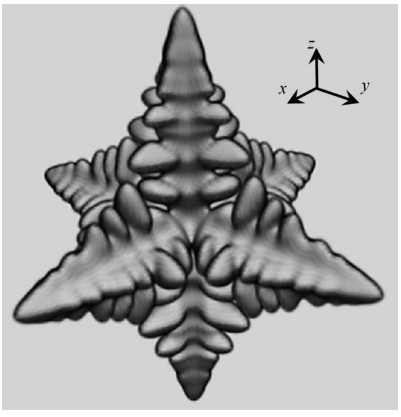


図1　二元系合金の等温凝固におけるデンドライト成長の計算結果．

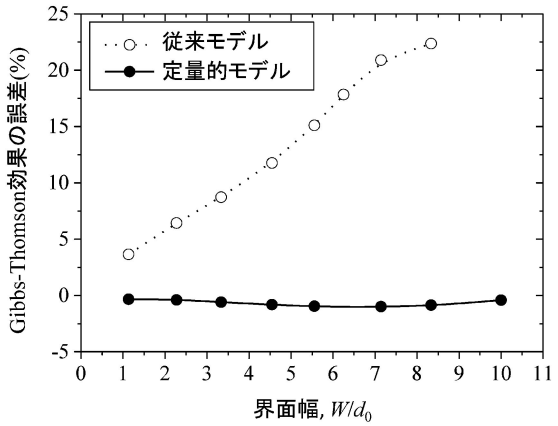


図2　フェーズフィールド・シミュレーションにおけるGibbs−Thomson効果の精度．

ミクロ偏析はデンドライト・レベルの濃度の不均一性であり，鋳片品質に直結する重要な因子である．ミクロ偏析を予測する解析モデルは過去に複数提案されており，数値計算による解析も行われてきた．しかし，ミクロ偏析に対する組織変化の影響については十分に議論されてきたとは言い難い．ここでは，定量的モデルを用いた等軸デンドライト成長の2次元シミュレーションによって，ミクロ偏析挙動を解析した例を紹介する．

対象としたのは，Fe–0.04 mass%C–1.0 mass%Mn 三元系合金である．温度は空間的に均一として，一定速度 10 K/s で冷却する条件を想定した．また，初期条件として球形の固相を中心に配置し，周期的境界条件を課して，単一デンドライトの成長から凝固終了までをシミュレートした．凝固終了直後の Mn のミクロ偏析パターンを**図 3**(a)に示す．Mn 濃度の低い領域は凝固初期に固相に変態した領域である．そして，凝固末期まで液相として残っていた領域において Mn 濃度が高くなっている．つまり，このパターンは組織の時間変化を直接反映したものに相当する．また，ここで詳細を説明することはできないが，このミクロ偏析パターンの形成には，凝固中のタイライン・シフトが影響を及ぼしており，その影響の大きさは組織変化と密接に関係している．

図 3(b)に示したのは，同じ合金系において同じ条件で計算した Mn 偏析の結果である．ただし，この計算では潜熱発生に伴う復熱の効果を導入している．その結果，冷却は全体として緩慢になり，粗大な組織が成長した．それに伴いミクロ偏析パターンも異なっている．Mn 濃度のピーク位置とピーク値が図 3(a)とは異なり，最大の偏析量は図 3(b)の方が大きい．図 3 は，冷却条件の変化に対する組織の応答にミクロ偏析パターンが著しく影響を受けることを示した例である．このように，定量的モデルによってミクロ偏析と組織形態との関係について高精度な解析が可能になっており，今後，詳細な調査を予定している．

(3) 大規模計算への展開

フェーズフィールド法が種々の実用問題に応用される際には，大規模計算が重要な役割を果たすと考えられる．その点について，ここで触れておきたい．凝固現象がマルチフィジックスの問題であることを既に述べたが，凝固組織のシミュレーションでは，一般に数桁異なる(時間と)空間スケールを同時に取り扱う必要がある．簡単のため，合金の一方向凝固における定常状態を対象とし，流動の影響を無視すると，このプロセスは熱拡散長 l_T と溶質拡散長 l_D といった特性長さによって特徴づけられる．l_T は温度勾配の方向(凝固方向)における液相線温度と固相線温度間の距離であり，固液二相共存領域の長さに関係する．l_D は固液界面前方に生じる溶質富化層の長さを表すものであり，固相間の競合成長が l_D のスケールで生じる．l_T は温度勾配に，l_D は成長速度に依存する．そして，これら凝固条件(と合金系)によって決まる長さに加えて，キャピラリー長 d_0 は組織の最小サイズに関わる重要な特性長さである．したがって，凝固組織シミュレーションにおける最小長さ(グリッド間隔 Δx)と最大長さ(システム長)は，これら三つの特性長さを同時に扱えるように設定する必要がある．これらの特性長さは合金系と凝固条件によって異なるが，一般に，d_0 は 10^{-8} m 程度，l_D は 10^{-6}～10^{-3} m の範囲，l_T は 10^{-4}～10^{-2} m の範囲であることが多い．つまり，10^{-8}～10^{-2} m のスケールをシミュレーションで同時に扱わなくてはならない．実際には，最小の空間スケールは d_0 そのものではなく，固液界面の最小の曲率半径で決まるため，d_0 よりも一桁，または二桁大きな Δx を設定できることがあるが，それでもシステム長はその1000～10000倍以上の長さに設定することが求められる．したがって，現在までシミュレーションが対象とできる領域や条件に大きな制約があった．しかし，この状況は年を追うごとに著しく改善している．

図 4 に示したのは，凝固シミュレーションの計算規模の年次推移である．白色のプロットは，1980年から2000年の国際会議“Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes(MCWASP)”の proceedings に掲載されている大規模な凝固シミュレーション(伝熱・溶質拡散のマクロ・シミュレーションなど)のうち，空間格子点数の上位三つの値を示したものである[25]．時間ステップ数が考慮されていないため，やや正確さに欠けるが，計算規模が年々増加していることがわかる．そして，図 4 における二つの実線は，これらのデータ点から求めた外挿線であり[25]，

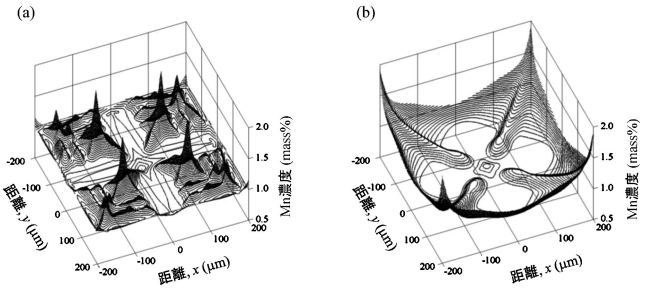


図 3　Fe–C–Mn 合金における等温凝固後の Mn 濃度のミクロ偏析パターン．(a) 潜熱の効果なし，(b) 潜熱の効果あり．

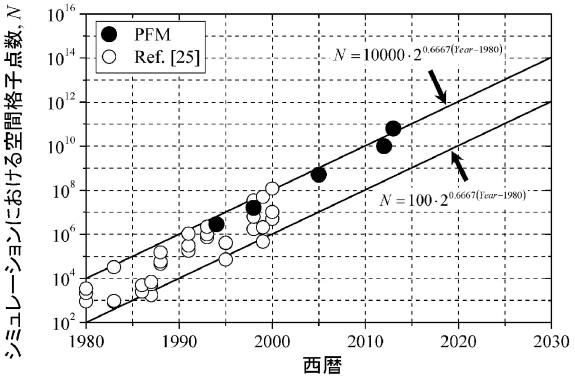


図 4　凝固シミュレーションの計算規模の年次推移．

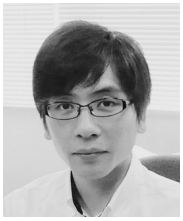
これらは1.5年で2倍という増加率を示している．ここで，黒色のプロットがフェーズフィールド・シミュレーションのデータであり[14][18][26]-[28]，著者が把握している大規模計算のデータをプロットしたものである．フェーズフィールド・シミュレーションの計算規模も同様の速度で年々増加していることがわかる．2013年にTakakiらが報告した大規模計算においては，格子点数が約7×10^{10}個であり，一辺が数mmの3次元システムを対象にして，Al-Si合金の一方向凝固におけるデンドライト競合成長がシミュレートされている[28]．こういった大規模計算によってシミュレーションから得られる知見が一層豊富になっている．また，図4から将来の計算規模を予想してみると，例えば，2020年頃には10^{12}，2030年頃には10^{14}個の格子点数まで増加し，これは数百nmのグリッド間隔を用いて，一辺が数cmの3次元システムや一辺が数mの2次元システムを計算できる規模になる．こういった大規模計算によって凝固組織シミュレーションの有用性が飛躍的に向上することから，凝固組織の大規模計算の取り組みはHPCI戦略プログラム分野2においても鋭意進められている[29]．また，こういったスーパーコンピュータ・レベルの進展に加えて，一般のサーバ機も近年では並列計算指向の開発が進められており，計算能力の向上が著しいことを付記しておく．

4. おわりに

本稿では，定量的フェーズフィールド法による凝固組織シミュレーションについて紹介した．このモデルの発展により，現象論に起因する任意性を排除することができ，一意的な結果を算出することが可能になった．ただし，定量的フェーズフィールド法は，現在においても発展途上にある．例えば，現状のモデルは，濃度分配に関する局所平衡が成立する条件でのみ適用可能である．つまり，急速凝固で問題となるsolute trappingを記述することはできない．この点を含めて，現在，モデルの高度化が精力的に進められている．モデルの高度化と計算技術・計算機能力の向上により，凝固組織シミュレーションがさらに有効なものに進化すると期待している．

文　献

（1）M. Asta, C. Beckermann, A. Karma, W. Kurz, R. Napolitano, M. Plapp, G. Purdy, M. Rappaz and R. Trivedi: Acta Mater., **57**(2009), 941.
（2）D. Juric and G. Tryggvason: J. Comput. Phys., **123**(1996), 127.
（3）R. Almgren, W.-S. Dai and V. Hakim: Phys. Rev. Lett., **71**(1993), 3461.
（4）Ch.-A. Gandin and M. Rappaz: Acta Mater., **45**(1997), 2187.
（5）T. Suzuki, M. Ode, S. G. Kim and W. T. Kim: J. Cryst. Growth, **237-239**(2002), 125.
（6）W. J. Boettinger, J. A. Warren, C. Beckermann and A. Karma: Annu. Rev. Mater. Res., **32**(2002), 163.
（7）I. Steinbach: Modell. Simul. Mater. Sci. Eng., **17**(2009), 073001.
（8）T. Takaki: ISIJ Int., **54**(2014), 437.
（9）高木知宏，山中晃徳：機械の研究，**61**(2009)～**63**(2010).
(10) 小林　亮，高木知弘，小山敏幸，大野宗一，松浦清隆，竹澤晃弘：計算工学，**15**(2010), 2287-2308.
(11) 小山敏幸，大野宗一，松浦清隆，大出真知子：金属，**80**(2010), 92-108.
(12) W. Kurz and D. J. Fisher: Fundamentals of Solidification, Trans Tech Publications Ltd, Switzerland, (1992).
(13) R. Kobayashi: Physica D, **63**(1993), 410.
(14) R. Kobayashi: Exp. Math., **3**(1994), 59.
(15) A. A. Weeler, W. J. Boettinger and G. B. McFadden: Phys. Rev. A, **45**(1992), 7424.
(16) S. G. Kim, W. T. Kim and T. Suzuki: Phys. Rev. E, **60**(1999), 7186.
(17) I. Steinbach and F. Pezzolla: Physica D, **134**(1999), 385.
(18) A. Karma and W.-J. Rappel: Phys. Rev. E, **57**(1998), 4323.
(19) A. Karma: Phys. Rev. Lett., **87**(2001), 115701.
(20) S. G. Kim: Acta Mater., **55**(2007), 4391.
(21) R. Folch and M. Plapp: Phys. Rev. E, **72**(2005), 011602.
(22) M. Ohno and K. Matsuura: Phys. Rev. E, **79**(2009), 031603.
(23) M. Ohno and K. Matsuura: Acta Mater., **58**(2010), 5749.
(24) M. Ohno: Phys. Rev. E, **86**(2012), 051603.
(25) V. R. Voller and F. Porté-Agel: J. Comput. Phys., **179**(2002), 698.
(26) T. Pusztai, G. Bortel and L. Gránásy: Mater. Sci. Eng. A, **413-414**(2005), 412.
(27) T. Shimokawabe, T. Aoki, T. Takaki, A. Yamanaka, A. Nukada, T. Endo, N. Maruyama and S. Matsuoka: SC '11 Proceedings of 2011 International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis, (2011), Article No. 3.
(28) T. Takaki, T. Shimokawabe, M. Ohno, A. Yamanaka and T. Aoki: J. Cryst. Growth, **382**(2013), 21.
(29) http://www.cms-initiative.jp/



大野宗一

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★
2004年3月　北海道大学　大学院工学研究科　博士課程修了
2004年4月　クラウスタール工科大学　金属材料研究所　博士研究員
2006年2月　北海道大学　量子集積エレクトロニクス研究センター　博士研究員
2007年10月　北海道大学　大学院工学研究科　助教
2009年11月- 現職
専門分野：計算材料科学，金属組織学
◎合金材料の拡散相変態や粒成長の組織形成シミュレーション法の開発と応用に従事.
★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★