フェーズフィールド法による デンドライト凝固シミュレーションの最近の発展 Recent developments of dendritic solidification simulations by phase-field method

高木 知弘

Tomohiro TAKAKI

1. はじめに

合金の凝固過程においては、何がしかのきっかけで液相内に固相が核生成し、固液界面が液相側に移動することで凝固が進行する。この際、固相は球状には成長せず、複雑で異方性の強い樹枝状の形態を呈する。この樹枝状結晶をデンドライト (dendrite) と呼ぶ^{1), 2)}。デンドライトは、固液界面物性の異方性と、固液界面移動時に界面から放出される潜熱の液相側への拡散、および固相内に固溶できない溶質の液相側への拡散などの相互作用によって形成される。このため、デンドライト成長を数値的に表現するためには、これらの現象を考慮しつつ固液界面の移動を表現する自由境界問題を解く必要がある。自由境界問題は、界面形態が円や球のような簡単な形状であれば容易に解くことができるが、デンドライトのように複雑な形態では解くことが困難となる。

フェーズフィールド法 (phase-field method)^{3)~6)} は、自由境界問題を界面を追跡することなく比較的容易に解くことのできる手法である。この手法の考え方は、拡散界面モデルとして Cahn-Hilliard モデル⁷⁾ や Allen-Cahn モデル⁸⁾ として知られていたが、1990 年頃に小林がフェーズフィールド法を用いてデンドライト成長の再現に成功^{9), 10)} したことが引き金となり、フェーズフィールド法という名称で統一されていった。現在では、定量モデルの発展によって、フェーズフィールド法はデンドライト成長を精度よく再現可能な唯一の手法として広く認められている。一方で、個々のデンドライトを精度よく表現するためには十分な解像度が必要となるため、定量モデルを用いたとしても計算コストは高く、これまで 2 次元問題や 3 次元問題における一つのデンドライトの再現など、その適用は限定されていた。このため、デンドライトスケールの表現にはフェーズフィールド法、凝固組織を考慮した系全体のシミュレーションにはセルオートマトン法など、使い分けがなされてきた。現在でもこの使い分けは行われているが、最近の計算機の性能向上によって、フェーズフィールド法による複数デンドライトの競合成長や液相流動を伴う現象の再現が可能となりつつある。

本稿では、著者の最近の成果を中心に、フェーズフィールド法によるデンドライト成長シミュレーションに関する最先端の研究を紹介する。はじめに、二元合金凝固のフェーズフィールドモデルを簡単に説明する。次に、画像処理用演算プロセッサ (graphics processing unit: GPU) を用いたシミュレーションについて述べる。その後、柱状デンドライトの競合成長、液相流動を伴うデンドライト成長、デンドライト樹間の透過率評価に関する研究を紹介する。いずれも GPU を多数搭載した東京工業大学のスーパーコンピュータ (スパコン) TSUBAME を用いた大規模シミュレーションによるものである。

2. フェーズフィールド法

2.1 モデル

フェーズフィールド法は^{5), 6)}、デンドライト成長や粒成長などの材料組織予測だけではなく、例えば混相流^{11), 12)}、構造物のトポロジー最適化^{13), 14)}、き裂進展^{15), 16)} など、境界の移動を伴う問題に用いられている。最大の利点は、界面の位置を追跡する必要がないことである。フェーズフィールド法では、界面両側の状態の違いを区別するために、フェーズフィールド変数を新しく導入し、反応拡散方程式に帰着するフェーズフィールド方程式を数値的に解くことによって界面の移動を表現する。

ここでは二元系合金の等温凝固を考える。フェーズフィールド変数を ϕ で表し、 $\phi=+1$ を固相、 $\phi=-1$ を液相と定義する。KKS (Kim-Kim-Suzuki) モデル¹⁷⁾ と希薄固溶体近似を導入すると、 ϕ と溶質濃度 c の時間発展方程式を次のように得ることができる^{18), 19)}。

$$\tau \frac{\partial \phi}{\partial t} = W^2 \nabla^2 \phi - \frac{df(\phi)}{d\phi} - \lambda \frac{dg(\phi)}{d\phi} u \quad (1)$$

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} [1 + k - (1 - k)h(\phi)] \frac{\partial u}{\partial t} \\ & = \nabla D_l q(\phi) \nabla u + \frac{1}{2} [1 + (1 - k)u] \frac{\partial h(\phi)}{\partial t} \end{aligned} \quad (2)$$

なお、濃度 c の代わりに無次元過飽和度 $u = (c_l - c_i^s) / (c_l^s - c_i^s)$ を用いている。 c_l と c_s はそれぞれ液相内と固相内の濃度、 c_l^s と c_s^s はそれらの平衡濃度であり、平衡分配係数における $k = c_s / c_l = c_s^s / c_l^s$ の関係を仮定している。 $f(\phi)$ は $\phi = \pm 1$ において最小値をとる固液界面の障壁ポテンシャル、 $g(\phi)$ は固液相のエネルギーを内挿する ϕ の単調増加関数、 $h(\phi)$ と $q(\phi)$ は、それぞれ濃度と拡散係数の内挿関数である。また、 τ は ϕ に対する緩和時間、 W は界面幅、 λ は熱力学的駆動力に関係する定数、 D_l は液相内の拡散係数である。

式(1)の右辺第3項が0の平衡状態の時、第1項の拡散項と第2項の反応項がつり合い、 ϕ は時間変化しない。ただし、これは1次元問題のときだけである。拡散項はラプラス演算子を含むため、2次元以上では曲率駆動が生じ第3項の熱力学的駆動力が0であっても界面は移動する。第3項が0でない場合は、 u の符号と絶対値の大きさに依存して界面の移動方向と移動速度が決定される。なお、デンドライトの成長を表現する場合は、式(1)の τ と W に界面エネルギーの異方性関数を導入する必要がある。この際、式の形は少し複雑となる。異方性の大きさは1%程度と大変小さいが、この小さい異方性を導入することで溶質拡散場の作用によって異方性の極めて強いデンドライト形態が表現可能となる。

KKSモデルの有用性は広く認められており、式(1)と式(2)は多く用いられているが、解が界面幅 W に依存する問題は残ったままであった。なお、KKSモデルを導入する必要性に関しては原著論文¹⁷⁾ もしくは解説記事²⁰⁾ を参照頂きたい。解の界面幅 W 依存性の問題を解決するために、式(2)の右辺に ∇J_{AT} が加えられる^{18), 21)}。ここで、 J_{AT} は antitrapping 流束ベクトルと呼ばれ、界面法線方向の溶質の移動量を調整し、界面幅 W に依存しない結果を出す。このモデルを定量的フェーズフィールド (quantitative phase-field) モデルと呼ぶ。凝固問題では定量的モデルを用いるのが一般的となっている。定量的モデルによって大きな界面幅、つまり大きな数値格子を用いることが可能となり、数値シミュレーションを効率的に行えるようになった。定量的モデルは Karma ら^{18), 21)} によって提案されたが、このモデルは固体内の拡散係数を0としたものであった。そこで、大野らは固体内の拡散も考慮可能な定量的モデルを構築した¹⁹⁾。さらに、大野らは多相系²²⁾、非等温多元系²³⁾ への拡張を行った。定量的モデルにおける antitrapping 項は人為的に導入されたものであったが、Ohno らによる変分的定式化において antitrapping 項は自然と導出されるものであることが示された^{24), 25)}。また、式(1)の界面障壁ポテンシャル $f(\phi)$ に対しては二重井戸型ポテンシャル (double-well potential) が通常用いられているが、二重障壁型ポテンシャル (double-obstacle potential) を用いても $g(\phi)$ と $h(\phi)$ を適切に選択すれば、二重井戸型ポテンシャルを用いた場合と同程度の精度を出せることを示している²⁶⁾。二重障壁型ポテンシャルは、多結晶問題におけるマルチフェーズフィールドモデルで多用されており²⁷⁾、多結晶凝固から粒成長までを統一的に高精度に再現可能なシミュレーションの可能性に道筋を付けた。以降のシミュレーション例においては、いずれも大野らの希薄固溶体近似を用いた等温凝固問題に対する定量的モデル¹⁹⁾ を用いている。

2.2 離散化と高性能計算

式(1)と式(2)を見るとわかるように、空間次元を変えても基本的に式は変わらないことがわかる。このため、2次元や3次元への展開もそう難しくはない。また、基本的に拡散方程式であるため、一般的な差分法を用いて比較的容易に離散化ができ、プログラムもシンプルである。このため、プログラムの並列化が行いやすいこともフェーズフィールド法の利点である。一方で、定量的モデルの発展によって大きな数値格子を用いることができるようになったとはいえ、表現しようとする組織形態を再現しうると十分に細かい格子を用いる必要がある。たとえば、デンドライトの2次元計算の場合、先端曲率半径の1/5以下の格子サイズが必要といわれており、これによっておのずと計算コストは高くなる。このため、フェーズフィールド法を用いたデンドライト成長シミュレーションは、2次元もしくは3次元におけるデンドライト1本など、材料組織というよりもデンドライト個々を対象としたものであった。

最近、GPUを科学計算に用いるGPGPU (general purpose computing on graphics processing units) が注目され、フェーズフィールドシミュレーションにおいても2011年頃から用いられるようになり、現在では多くの研究で用いられている^{23), 28), 29)}。通常のCPUはコア数が数個から数十個であるのに対し、GPUは数千のコアを有しており、これらを並列化させることで高速計算が可能となる。しかしながら、条件分岐を伴うような複雑なプログラムの並列化は得意としておらず、差分法のように同様の計算を単純に繰り返すような問題に向いている。フェーズフィールド方程式は、先に述べたように一般的な差分法によって離散化が可能であり、全格子点において同じ計算を繰り返すだけのシンプルな計算である。加えて、デンドライト成長シミュレーションの場合、式(1)に異方性関数を加える必要があり、それらの計算に時間を要するため、格子系計算としては1ステップにおける計算量が多い。このため、複数GPUを用いた並列計算においては全計算時間に占めるデータ転送時間の割合が低下し、並列計算効率は高くなる³⁰⁾。このため、フェーズフィールドシミュレーションはGPU計算と大変相性がよい。一方で、GPUは搭載しているメモリが小さいことが欠点であった。これを補い、また計算をさらに高速化するために、著者のグループでは複数GPUを並列化させるフェーズフィールドシミュレーションを行ってきた^{30), 31)}。現在、単一GPUを用いたフェーズフィールドシミュレーションは多くのグループで行われるようになったが、複数GPUを並列させた計算は限られている。今後は複数GPU並列計算も普通に行えるようになると予想されるが、これまでは著者のグループが独占的に行ってきたおり、以下ではそのいくつかの結果を示す。なお、いずれも東京工業大学のGPUスパコンTSUBAMEを用いたものである。TSUBAMEは数年ごとにバージョンアップしており、GPUはTSUBAME2.0ではNVIDIA Tesla M2050、TSUBAME2.5ではNVIDIA Tesla K20X、TSUBAME3.0ではNVIDIA Tesla P100と変化している。GPU P100の単精度演算性能は9.5 TFlopsであり、単純な比較では現在のTSUBAME3.0は2.0の約10倍高速化している。

5

図1 単結晶Al-3mass%Cu合金のデンドライト競合成長シミュレーション ($G=20\text{ K/mm}$)⁴¹⁾。上図は側面図, 下図は上面図。計算領域サイズ 0.768^3 mm^3 (1024^3 格子点), 時間増分 $\Delta t=26.8\mu\text{s}$ 。スパコン TSUBAME2.5 において 256 GPU (NVIDIA Tesla K20X) を用いた並列計算が行われた。

3. デンドライトの競合成長

典型的な凝固組織は柱状晶と等軸晶から構成される²⁾。柱状晶の形成過程では、鑄壁に不均一核生成した無数の固相が熱流方向に競合しつつ成長する。この際、優先成長方向が熱流方向に近い粒がそうでない粒を淘汰して成長し続けるといわれている。この競合成長を Walton-Chalmers (WC) モデル³²⁾ と呼ぶことにする。フェーズフィールド法の大規模シミュレーションによって、一つの粒の中に複数のデンドライトを含む競合成長を表現可能となり、この WC 競合成長モデルを基に単結晶、2結晶、多結晶における柱状粒の競合成長の評価を行った。なお、いずれのシミュレーションにおいても温度勾配 G 一定の frozen temperature 近似¹⁸⁾ を用い、材料は Al-3mass%Cu を対象としている。

3.1 単結晶

単結晶材が一方凝固する際に、一次枝が成長方向垂直断面内においてどのような配列になるのか興味がある³³⁾。一次枝配列に関しては実験の評価^{34), 35)} およびセル形態^{36)~40)} に関していくつか研究が行われているが、液相流動を伴わない理想的な拡散状態におけるデンドライトの配列評価は行われていない。そこで、図1のような単結晶競合成長シミュレーションを行った⁴¹⁾。 0.768^3 mm^3 の領域を 1024^3 個の格子点で分割し、下面中央の一つの結晶核からシミュレーションを開始した。なお、引拔速度 $V_p=100\mu\text{m/s}$ 、時間増分 $\Delta t=26.8\mu\text{s}$ 、側面は周期境界とし、温度勾配を $G=5, 10, 20, 50, 100, 200\text{ K/mm}$ と変化させ、デンドライト形態からセル形態までを表現した。図1は $G=20\text{ K/mm}$ の結果を示している。計算を開始すると、図1(a)のように下端面に沿って固相が放射状に成長し、そこから上方向に無数のアームが成長する。これらのアームは競合的に成長し、図1(b)では早く成長した中央部ではアーム間隔が比較的大きく、端部においては小さく、全体的にランダムなデンドライト配置となっている。

しかしながら、長く成長を続けると図1(c)のように初期の影響はほとんど見られなくなり、上から見ると典型的なデンドライトの十字形態を呈している。さらに非常に長い計算を行うと、図1(d)のように規則的な配列が確認された。このシミュレーション結果に対して、一次アーム先端座標を用いたボロノイ分割によって一次アームの配列を評価した結果、図1(a) (b)の成長初期は四角形から八角形までの様々な配列が確認され、無秩序な並びであった。図1(c)の状態では一次アーム数はほぼ一定、配列は六角形が支配的となり、ほかには五角形と七角形が同じ数だけ存在する典型的な六角形構造となった。なお、図1(c)から(d)への変化では一次アーム数は一定であるが、六角形構造の数は増え配列の規則度は高くなった⁴¹⁾。

以上のように、一方凝固における一次アームの配列は、セルとデンドライトいずれも六角形が支配的であることを示した。ただし、これは溶質拡散場のみの理想的な条件下における定常成長状態での結果である。核生成やブランチング直後、および実際の凝固における自然対流を伴う条件においては、必ずしも本シミュレーション結果と同じにはならないことに注意いただきたい。

3.2 2結晶

柱状粒の競合成長は一般的に WC モデルに従うといわれているが、2結晶の一方凝固において WC モデルに従わない現象が報告されている^{42)~45)}。つまり、優先成長方向が温度勾配方向に一致する (favorably oriented: FO) 粒が、傾いて成長する (unfavorably oriented: UO) 粒に淘汰されるという普通では考えられない現象である。このメカニズムを解明するために、図2のような2次元2結晶の競合成長シミュレーションが行われている^{28), 46)~48)}。図2は、 $3.072 \times 1.152\text{ mm}^2$ の領域を 4096×1536 格子点に分割し、領域の左下に FO 粒の核、右下に傾き角 10° の UO 粒の核を配置してシミュレーションを開始した際の、デンドライト形態と濃度分布の時間変化で

図2 2次元2結晶Al-3mass%Cu合金のデンドライト競合成長シミュレーション ($G=10\text{ K/mm}$)⁴⁸⁾。温度勾配方向に成長するFO (favorably oriented) 粒と 10° の傾きを有するUO (unfavorably oriented) 粒が、それぞれ左右に配置されている。計算領域サイズ $3.072 \times 1.152\text{ mm}^2$ (4096×1536 格子点)、時間増分 $\Delta t = 37.5\text{ }\mu\text{s}$ 。スパコンTSUBAME2.0において8GPUs (NVIDIA Tesla M2050) を用いた並列計算が行われた。

ある⁴⁸⁾。引抜速度 $V_p = 100\text{ }\mu\text{m/s}$ 、温度勾配 $G = 10\text{ K/mm}$ 、時間増分 $\Delta t = 37.5\text{ }\mu\text{s}$ 、境界はすべてゼロ Neumann 条件としている。計算を開始すると、図2(a) (b) のように温度の低い下端面に沿って結晶が成長し、その後上方向に向かって多くのデンドライトが成長している。粒内におけるデンドライト間の競合成長が終わると、図2(c) のような定常成長になる。図2(c) 中の「GB」と示すところがFO粒とUO粒の粒界であり、傾きの異なる2つのデンドライトが粒界において相互作用する。この際、右から移動して粒界に達したUOデンドライトは、FOデンドライトとの相互作用によって徐々にデンドライト先端位置を下げながらFOデンドライトに近づき、最終的にはFOデンドライトに淘汰される。この際、FOデンドライトはUOデンドライトの接近によってわずかにデンドライト先端位置を下げ、わずかに左側に移動する。この相互作用を繰り返すうちに、図2(c) 中に白い矢印で示すFOデンドライト間隔が、FOデンドライトが安定に成長できる臨界間隔より小さくなると、粒界のFOデンドライトは淘汰される。

図2(d) の粒界におけるFOデンドライトは、UOデンドライトに淘汰される直前の状態である。粒界におけるFOデンドライトの淘汰が繰り返されると、図2(d) のように徐々に粒界が左側へ移動し、最終的にはFO粒がUO粒に淘汰される。これがWCモデルに従わない普通でない淘汰現象とそのメカニズムである。

この普通でない淘汰現象は3次元問題においても観察され、同じメカニズムで淘汰が生じることが確認された⁴⁹⁾。この際、2次元問題よりも3次元問題の方が淘汰には時間がかかる。これは3次元問題の方がデンドライト先端からの溶質拡散領域が広くなり、粒界におけるデンドライト間の相互作用が小さくなるためである。また、3次元においては粒界においてFO粒とUO粒の間に様々な方位関係があり、他の方位関係に関するシミュレーションも行われている⁵⁰⁾。なお、図2の計算は8個のGPU (NVIDIA Tesla M2050) を並列させて行われたが、最新のGPUを用いれば1つのGPUでの計算が可能である。

3.3 多結晶

図2の普通でない淘汰現象は、2次元多結晶成長シミュレーションにおいても多く観察された⁵¹⁾。一方、図3に示す3次元多結晶シミュレーションにおいては、図2のような現象はほとんど観察されず、WCモデルに従った競合成長が観察された⁵²⁾。図3の結果は図1と同じサイズの領域を示しているが、実際の計算ではこの領域の上部に1辺が2倍の格子サイズを用いた256格子分の領域を付加したシミュレーションを行っている。図1の単結晶のシミュレーションとは異なり、計算初期に64個のランダムな方位を有する固相核を下端面に配置し計算を開始した。それ以外は単結晶の計算条件と同じである。図3の色は、優先成長方向と温度勾配方向である z 軸とのなす角度であり、青から赤に向かって角度が小さくなる。シミュレーション初期は様々な色の粒が成長しているが、成長とともに青色の粒、緑色の粒が淘汰され、最終的に角度の小さい赤色の粒が残った。このように、WCモデルに従った結果を得た。2次元と3次元における淘汰挙動の違いは、相互作用する粒の数にある⁵²⁾。2次元の場合、相互作用は両隣の2つの粒のみであり、2つの粒界における方位関係が普通でない競合成長を生じる条件であればその粒は長く成長できる。一方、3次元の場合は周囲に多くの粒があり、すべての粒界で普通でない淘汰現象を生じる関係となる割合は大変低くなる。以上のように、3次元多結晶競合成長においてはWCモデルに沿った淘汰現象⁵³⁾ を呈することを確認し、2次元問題や2結晶問題は特別な条件であることを示した。

4. 液相流動を伴うデンドライト凝固

地球上での合金の凝固においては必ず液相の流動が生じるため、液相流動を考慮した凝固組織予測シミュレーションが必要である。フェーズフィールド法と液相流動の連成シミュレーションにおいては、拡散界面において滑りなし条件を満足するBeckermannのモデル⁵⁴⁾ が多用されている。しかしながら、液相流動を考慮したフェーズフィールドシミュレーションはさらに計算コストが高くなる。このため、これまで3次元計算^{55), 56)} は限られており、多くは2次元問題^{57)~59)}

5

図3 多結晶 Al-3 mass%Cu 合金のデンドライト競合成長シミュレーション ($G=20 \text{ K/mm}$)⁵²⁾。上図は側面図, 下図は上面図。シミュレーションは, 下端面に置かれたランダム方位を有する 64 個の核から開始された。可視化領域サイズは 0.768^3 mm^3 (1024^3 格子点) であるが, 実際の計算では上部に粗い格子を有する液相部がある。時間増分 $\Delta t=26.8 \mu\text{s}$ 。スパコン TSUBAME2.5 において 144 GPUs (NVIDIA Tesla K20X) を用いた並列計算が行われた。

図4 サクシノニトリル-3 mass% アセトン合金における複数の等軸デンドライトの沈降シミュレーション⁷⁵⁾。上図は固体番号, 下図は溶質濃度。領域サイズは $2.048 \times 2.048 \text{ mm}^2$ (8192×8192 格子点)。スパコン TSUBAME3.0 において 16 GPUs (NVIDIA Tesla P100) を用いた並列計算が行われた。

として取り扱われてきた。この問題を解決すべく, 数値シミュレーションの効率化に関する研究が行われている。それらの多くは, アダプティブメッシュ法^{60)~62)}, 格子ボルツマン法^{63), 64)}, 並列計算⁶⁵⁾の適用, およびそれらの組み合わせ⁶⁶⁾によってなされている。

著者らは, 液相流動の計算法として並列計算の行いやすい格子ボルツマン法⁶⁷⁾をフェーズフィールド法と連成させ, 複数GPU並列化することでシミュレーションの大規模化と高速化を達成した⁶⁸⁾。この手法を用いることで, 強制対流を伴う3次元デンドライト成長における収束挙動評価をはじめて行い, 高精度な系統的シミュレーションを可能とした⁶⁹⁾。

また, 液相の溶質濃度に依存した密度変化による自然対流を伴うデンドライト成長シミュレーションを行った⁷⁰⁾。加えて, 液相中に孤立した等軸デンドライトの運動を伴う成長を表現可能なモデルを構築し⁷¹⁾, GPU計算によって計算の高速化⁷²⁾とデンドライトの長距離移動⁷³⁾を可能とした。さらに, このモデルを拡張することで, 複数の等軸デンドライトが運動しながら成長し, 衝突と合体を繰り返して凝固が進行する, 等軸晶の形成過程を再現可能なモデルの構築も行った⁷⁴⁾。また, この計算の複数GPU並列化を行うことで, 計算の大規模化を図り, 図4のような計算を可能とした⁷⁵⁾。より詳細な解説は他文献⁷⁶⁾を参照頂きたい。

以上のように、液相流動を伴うデンドライト成長のフェーズフィールドシミュレーションはここ数年でかなり発展したが、それでもまだ取り扱える領域が限られている。そのため、計算のさらなる効率化と大規模化が必要である。

5. デンドライト樹間の透過率評価

鋳造やマクロ偏析予測のシミュレーション^{77)~80)}においては、固液共存領域つまりデンドライト樹間の液相流動のしやすさを表す透過率が重要となる^{81)~83)}。透過率の評価は、デンドライト組織予測と、その組織に液相を流して透過率を求める2段階で行われるのが一般的である。その組み合わせにおいて、①いずれも実験により評価する方法、②組織は実験によって予測しそのデータを用いた流動シミュレーションによる方法、③いずれもシミュレーションにより評価する方法の3つの組み合わせ手法がある^{84),85)}。手法①は流動実験中に固相が溶けて流路が変化する問題や、内部構造がわからないため正確な固相率や流路形状が不明な欠点がある。手法②は大規模な放射光施設やシリアルセクション装置が必要であり系統的な評価は困難である。このため、手法③のシミュレーションによる評価が期待されている。しかしながら、デンドライト形態を最も高精度に予測可能なフェーズフィールド法は計算コストが高いため、デンドライトの一部のみを対象とした評価しか行われておらず^{86),87)}、透過率評価の妥当性は不明であった。

以上のような背景を受け、大規模デンドライトシミュレーション結果を用いる透過率評価の研究に着手した⁸⁵⁾。特に柱状組織に対する透過率評価が不十分であったため、柱状デンドライト構造に対する透過率評価を行った。デンドライト構造としては図1に示す単結晶の大規模シミュレーション結果に対して、格子ボルツマン法を用いてデンドライトの成長方向に垂直方向の流動を与えた。この際、圧力勾配によって流動を与える方法を採用することで周期境界条件の適用が可能となり、凝固組織に対して任意の方向への流動を与えることが可能となった。図1(c)の定常成長に達した直後の組織と、十分に時間が経過した図1(d)の透過率はほぼ同じ結果となった。また、図1(d)の平均一次アーム間隔を用いて、正方形配列と正六角形配列を有するデンドライト構造に対して透過率評価を行ったところ、図1(d)の結果と正六角形配列の透過率がほぼ一致した。さらに、固液界面の面積 A_{SL} と固体の体積 V_S の比として定義される比界面積 $S_S=A_{SL}/V_S$ を用いた無次元透過率 KS_S^2 は、図1(d)の結果、デンドライト正六角形配列の結果、円筒の正六角形配列に対する結果が非常によく一致した。つまり、柱状デンドライトの垂直方向流れに対する無次元透過率 KS_S^2 は、円筒の KS_S^2 を用いればよいという新しい結論を得た。さらに、多孔質材内の透過率を表現するコゼニー・カルマンの式⁸⁸⁾

$$K = \frac{(1-f_s)^3}{k_c S_S^2 f_s^2} \quad (3)$$

において円筒垂直流れの係数 k_c を求めたところ、 $k_c=9$ とすることでよい近似を得ることを確認した。等軸晶に関しては $k_c=3$ になるといわれており、デンドライト凝固組織の透過

率は統一的にコゼニー・カルマンの式で表現できる可能性がみえてきた。今後は、柱状デンドライト構造の軸方向の流れに対する評価、および透過率テンソルの評価を行う必要がある。また、凝固条件と比界面積 S_S の関係⁸⁹⁾を求めることも課題である。

6. おわりに

合金のデンドライト成長に対するフェーズフィールドモデルを簡単に説明したのちに、著者らの大規模フェーズフィールドシミュレーション研究を中心に最先端のフェーズフィールドシミュレーションとその応用を紹介した。フェーズフィールド法は複雑なデンドライト組織を高精度に表現可能であり、この計算を大規模化して3次元の材料組織としての情報を得ることで、様々な現象の解明や特性評価に用いることが可能となる。今回紹介した研究成果を得るためにはスパコンを必要とするが、計算機のハード面における成長は速く、近い将来、ここで紹介した成果はパソコン上でできるようになると考えられる。そうなれば、フェーズフィールド法が組織予測法としてより身近な手法となり、その重要性はますます増加するであろう。

謝 辞

本稿で紹介した成果は、北海道大学 大野宗一教授、東京大学 澁田 靖准教授、東京工業大学 青木尊之教授、東京大学 下川辺隆准教授、Escuela Politécnica Nacional 准教授 Roberto Rojas氏、京都工芸繊維大学大学院生の坂根慎治氏との共同研究として行われたものです。

参 考 文 献

- 1) J. A. Dantzig and M. Rappaz: Solidification, EFPL Press,(2009).
- 2) W. Kurz and D. J. Fisher: Fundamentals of Solidification, Trans Tech Publications Ltd.,(1989).
- 3) A. Karma and D. Tourret: Curr. Opin. Solid State Mater. Sci., **20** (2016), 25–36.
- 4) T. Takaki: ISIJ Int., **54** (2014), 437–444.
- 5) 小山敏幸, 高木知弘: フェーズフィールド法入門, 丸善出版, (2013).
- 6) 高木知弘, 山中晃徳: フェーズフィールド法: 数値シミュレーションによる材料組織設計, 養賢堂, (2012).
- 7) J. W. Cahn and J. E. Hilliard: J. Chem. Phys., **28** (1958), 258–267.
- 8) S. M. Allen and J. W. Cahn: Acta Metall., **20** (1972), 423–433.
- 9) R. Kobayashi: Physica D, **63** (1993), 410–423.
- 10) R. Kobayashi: Expo. Math., **3** (1994), 59–81.
- 11) D. M. Anderson, G. B. McFadden and A. A. Wheeler: Annu. Rev. Fluid Mech., **30** (1998), 139–165.
- 12) S. Aihara, T. Takaki and N. Takada: Comput. Fluids, **178** (2019), 141–151.
- 13) A. Takezawa, S. Nishiwaki and M. Kitamura: J. Comput. Phys., **229** (2010), 2697–2718.
- 14) J. Kato, S. Ogawa, T. Ichibangase and T. Takaki: Struct. Multidiscip. Optim., **57** (2018), 1937–1954.
- 15) C. Miehe, F. Welschinger and M. Hofacker: Int. J. Numer. Methods Eng., **83** (2010), 1273–1311.
- 16) K. Oshima, T. Takaki and M. Muramatsu: Int. J. Comp. Mater. Sci. Eng., **03** (2014), 1450009.
- 17) S. G. Kim, W. T. Kim and T. Suzuki: Phys. Rev. E, **60** (1999), 7186–7197.
- 18) B. Echebarria, R. Folch, A. Karma and M. Plapp: Phys. Rev. E, **70** (2004), 061604.
- 19) M. Ohno and K. Matsuura: Phys. Rev. E, **79** (2009), 031603.

- 5
- 20) 大野宗一 : Int. J. Microgravity Sci. Appl., **30** (2013), 24–29.
- 21) A. Karma: Phys. Rev. Lett., **87** (2001), 115701.
- 22) M. Ohno and K. Matsuura: Acta Mater., **58** (2010), 5749–5758.
- 23) M. Ohno: Phys. Rev. E, **86** (2012), 051603.
- 24) M. Ohno, T. Takaki and Y. Shibuta: Phys. Rev. E, **93** (2016), 012802.
- 25) M. Ohno, T. Takaki and Y. Shibuta: Phys. Rev. E, **96** (2017), 033311.
- 26) M. Ohno, T. Takaki and Y. Shibuta: J. Comput. Phys., **335** (2017), 621–636.
- 27) I. Steinbach and F. Pezzolla: Physica D, **134** (1999), 385–393.
- 28) D. Tournet and A. Karma: Acta Mater., **82** (2015), 64–83.
- 29) A. Yamanaka, T. Aoki, S. Ogawa and T. Takaki: J. Cryst. Growth, **318** (2011), 40–45.
- 30) T. Shimokawabe, T. Aoki, T. Takaki, A. Yamanaka, A. Nukada, T. Endo, N. Maruyama and S. Matsuoka: Peta-scale phase-field simulation for dendritic solidification on the TSUBAME 2.0 supercomputer, Proceedings of 2011 SC-International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis, (2011), 1–11.
- 31) T. Takaki, T. Shimokawabe, M. Ohno, A. Yamanaka and T. Aoki: J. Cryst. Growth, **382** (2013), 21–25.
- 32) D. Walton and B. Chalmers: Trans. Metall. Soc. AIME, **215** (1959), 447–457.
- 33) H. Jacobi and K. Schwerdtfeger: Metall. Trans. A, **7** (1976), 811–820.
- 34) T. Suzuki and T. Sato: J. Jpn. Inst. Met., **61** (1997), 449–455.
- 35) J. Hui, R. Tiwari, X. Wu, S. N. Tewari and R. Trivedi: Metall. Mater. Trans. A, **33** (2002), 3499–3510.
- 36) B. Billia, H. Jamgotchian and H. Nguyen Thi: Metall. Trans. A, **22** (1991), 3041–3050.
- 37) S. N. Tewari, Y. H. Weng, G. L. Ding and R. Trivedi: Metall. Mater. Trans. A, **33** (2002), 1229–1243.
- 38) L. Sturz, G. Zimmermann, M. Mathes, S. Rex and B. Kauerauf: Metall. Mater. Trans. A, **35** (2004), 239–246.
- 39) N. Bergeon, D. Tournet, L. Chen, J. M. Debierre, R. Guérin, A. Ramirez, B. Billia, A. Karma and R. Trivedi: Phys. Rev. Lett., **110** (2013), 226102.
- 40) D. Tournet, J. M. Debierre, Y. Song, F. L. Mota, N. Bergeon, R. Guérin, R. Trivedi, B. Billia and A. Karma: Phys. Rev. E, **92** (2015), 042401.
- 41) T. Takaki, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Shimokawabe and T. Aoki: Acta Mater., **118** (2016), 230–243.
- 42) N. D'Souza, M. G. Ardakani, A. Wagner, B. A. Shollock and M. McLean: J. Mater. Sci., **37** (2002), 481–487.
- 43) Y. Z. Zhou, A. Volek and N. R. Green: Acta Mater., **56** (2008), 2631–2637.
- 44) X. B. Meng, Q. Lu, X. L. Zhang, J. G. Li, Z. Q. Chen, Y. H. Wang, Y. Z. Zhou, T. Jin, X. F. Sun and Z. Q. Hu: Acta Mater., **60** (2012), 3965–3975.
- 45) H. Yu, J. Li, X. Lin, L. Wang and W. Huang: J. Cryst. Growth, **402** (2014), 210–214.
- 46) J. Li, Z. Wang, Y. Wang and J. Wang: Acta Mater., **60** (2012), 1478–1493.
- 47) T. Takaki, M. Ohno, T. Shimokawabe and T. Aoki: Acta Mater., **81** (2014), 272–283.
- 48) Y. Shibuta, M. Ohno and T. Takaki: JOM, **67** (2015), 1793–1804.
- 49) T. Takaki, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Shimokawabe and T. Aoki: ISIJ Int., **56** (2016), 1427–1435.
- 50) C. Guo, J. Li, Z. Wang and J. Wang: Mater. Des., **151** (2018), 141–153.
- 51) T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe and T. Aoki: J. Cryst. Growth, **442** (2016), 14–24.
- 52) T. Takaki, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Aoki and C.-A. Gandin: Materialia, **1** (2018), 104–113.
- 53) C. A. Gandin, M. Rappaz, D. West and B. L. Adams: Metall. Mater. Trans. A, **26** (1995), 1543–1551.
- 54) C. Beckermann, H. J. Diepers, I. Steinbach, A. Karma and X. Tong: J. Comput. Phys., **154** (1999), 468–496.
- 55) J. H. Jeong, N. Goldenfeld and J. A. Dantzig: Phys. Rev. E, **64** (2001), 041602.
- 56) Y. Lu, C. Beckermann and J. C. Ramirez: J. Cryst. Growth, **280** (2005), 320–334.
- 57) X. Tong, C. Beckermann and A. Karma: Phys. Rev. E, **61** (2000), R49–R52.
- 58) Y. Natsume, K. Ohsasa and T. Narita: Mater. Trans., **43** (2002), 2228–2234.
- 59) J. C. Ramirez and C. Beckermann: Acta Mater., **53** (2005), 1721–1736.
- 60) R. Tönhardt and G. Amberg: J. Cryst. Growth, **213** (2000), 161–187.
- 61) C. W. Lan and C. J. Shih: J. Cryst. Growth, **264** (2004), 472–482.
- 62) C. C. Chen, Y. L. Tsai and C. W. Lan: Int. J. Heat Mass Transfer, **52** (2009), 1158–1166.
- 63) D. Medvedev and K. Kassner: Phys. Rev. E, **72** (2005), 056703.
- 64) D. Medvedev, T. Fischaleck and K. Kassner: Phys. Rev. E, **74** (2006), 031606.
- 65) Z. Guo, J. Mi, S. Xiong and P. S. Grant: J. Comput. Phys., **257** (2014), 278–297.
- 66) X. Zhang, J. Kang, Z. Guo, S. Xiong and Q. Han: Comput. Phys. Commun., **223** (2018), 18–27.
- 67) S. Succi: The Lattice Boltzmann Equation: For Fluid Dynamics and Beyond, Oxford University Press, United Kindom, (2001).
- 68) S. Sakane, T. Takaki, R. Rojas, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Shimokawabe and T. Aoki: J. Cryst. Growth, **474** (2017), 154–159.
- 69) S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Shimokawabe and T. Aoki: J. Cryst. Growth, **483** (2018), 147–155.
- 70) T. Takaki, R. Rojas, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Shimokawabe and T. Aoki: J. Cryst. Growth, **474** (2017), 146–153.
- 71) R. Rojas, T. Takaki and M. Ohno: J. Comput. Phys., **298** (2015), 29–40.
- 72) T. Takaki, R. Rojas, M. Ohno, T. Shimokawabe and T. Aoki: IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng., **84** (2015), 012066.
- 73) S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno and Y. Shibuta: Comput. Mater. Sci., **164** (2019), 39–45.
- 74) T. Takaki, R. Sato, R. Rojas, M. Ohno and Y. Shibuta: Comput. Mater. Sci., **147** (2018), 124–131.
- 75) Y. Shibuta, M. Ohno and T. Takaki: Adv. Theory Simul., **1** (2018), 1800065.
- 76) 高木知弘 : 混相流, **32** (2018), 337–344.
- 77) M. Ohno and H. Sato: Int. J. Heat Mass Transfer, **127** (2018), 561–570.
- 78) M. Ohno and H. Sato: ISIJ Int., **58** (2018), 114–122.
- 79) T.-T.-M. Nguyen, C.-A. Gandin, H. Combeau, M. Založnik and M. Bellet: Metall. Mater. Trans. A, **49** (2018), 1725–1748.
- 80) 及川勝成, 平田直哉, 安斎浩一 : 鉄と鋼, **103** (2017), 747–754.
- 81) 大中逸雄 : まてりあ, **53** (2014), 462–466.
- 82) C. Beckermann: Int. Mater. Rev., **47** (2002), 243–262.
- 83) M. C. Flemings: ISIJ Int., **40** (2000), 833–841.
- 84) 藁 千修, 高橋大喜, 河嶋佳純, 谷川英司, 大笹憲一 : 鉄と鋼, **99** (2013), 117–125.
- 85) T. Takaki, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta and T. Aoki: Acta Mater., **164** (2019), 237–249.
- 86) B. Böttger, C. Haberstroh and N. Giesselmann: JOM, **68** (2016), 27–36.
- 87) A. Ludwig, A. Kharicha, C. Hölzl, J. Domitner, M. Wu and T. Pusztai: Eng. Anal. Bound. Elem., **45** (2014), 29–35.
- 88) P. C. Carman: Flow of gases through porous media, Academic Press, New York, (1956).
- 89) H. Neumann-Heyme, K. Eckert and C. Beckermann: Acta Mater., **140** (2017), 87–96.