鉄基三元系合金のデンドライト形態予測および透過率の評価

菅原 諒介¹⁾・伊藤 利久²⁾・橿 千修³⁾・大笹 憲一^{3)*}

Prediction of Dendrite Morphology in Fe-base-Ternary Alloys and Evaluation of Permeability

Ryosuke SUGAWARA, Toshihisa ITOH, Yukinobu NATSUME and Kenichi OHSASA

Synopsis : Evolution of dendrite morphology in Fe-base ternary alloys (Fe-C-X : X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) was simulated by using the phase-field method with linking to the Thermo-Calc software. The complexity of the dendrite morphology of the alloys was evaluated by using fractal dimension and dimensionless perimeter. The values of evaluated fractal dimension and dimensionless perimeter lined as $P > V > Si > Cr > Mo > W > Mn$ and this result demonstrates that the both parameters of the fractal dimension and the dimensionless perimeter are effective to evaluate the complexity of dendrites. Permeability of simulated dendrite arrays was estimated by using the fractal dimension and the dimensionless perimeter as the tortuosity factor of interdendritic liquid channels. Obtained permeability corresponded to reported values of the permeability when the dimensionless perimeter was used as the tortuosity factor.

Key words : dendrite morphology; Phase-field method; third element addition; fractal dimension; permeability.

1. 緒言

大型鋼塊や連続铸造铸片内に生じるマクロ偏析は、最終製品の品質に大きな影響を与えるために、現在までに多くの研究が成されてきた¹⁻¹⁶⁾。マクロ偏析の生成原因は、デンドライト間隙の合金元素や不純物元素が濃化した液相が、熱や溶質対流、凝固収縮流等により長範囲を移動することによる。デンドライト間液相流動を抑制するには1) 合金成分の調整により濃化液相の密度差を小さくする、2) デンドライト形態を緻密にし、デンドライト間液相の流動抵抗を高める等の方法が有効である。ここでデンドライト形態を緻密にするためには i) 冷却速度を高める、ii) 凝固時の過冷度を大きくする、iii) 添加元素によるデンドライト形態制御等の方法が考えられるが、大型鋼塊や連铸铸片では i) と ii) の方法は通常困難であり、添加元素によるデンドライト形態制御が最も実用的な方法と思われる。しかしながら、デンドライト形態におよぼす添加元素の影響をすべて実験により調査することは、時間とコストの両面で大きな負荷となる。

近年フェーズフィールド法やセルオートマトン法等を用いたデンドライト組織形成シミュレーションが急速に進展している。特にフェーズフィールド法は、1990年代半ばか

ら急速に進展したシミュレーション手法であり、デンドライト側枝の発達を含むデンドライト全体の形状をリアルに再現することが出来る。しかし、現時点でフェーズフィールド法は計算負荷の面で広領域のマクロ凝固組織全体を再現することは困難である。しかし、単独のデンドライト形態におよぼす添加元素の影響を調べるのは、フェーズフィールド法の一つの応用法として適していると思われる。

従来デンドライト形態を定量的に表現する方法としては一般にデンドライト一次アーム間隔、二次アーム間隔が用いられてきた。しかしながら、デンドライト間液相流動を規定するデンドライト形態の複雑性、緻密性の評価には、アーム間隔だけでは不十分のように思われる。「フラクタル理論」は1970年代中頃に自己相似性を有するパターンを記述するために提唱されたもので、その後材料組織評価への応用例も報告されている¹⁷⁻²⁰⁾。また、デンドライト形態はフラクタル特性を持つことが報告されている^{21,22)}。

デンドライト形態を制御することでデンドライト間隙の液相流動を抑制し、マクロ偏析低減を行う際、デンドライト樹間液相の流動性を透過率として定量的に評価出来れば、流動解析に基づくマクロ偏析生成シミュレーションを行うことにより、铸塊内部に生成するマクロ偏析を定量的に予測することが出来る。透過率に関しては従来実験的

平成24年8月23日受付 平成24年9月3日受理 (Received on Aug. 23, 2012; Accepted on Sep. 3, 2012)

1) 秋田大学大学院生 (現: 日立金属 (株)) (Graduate School of Engineering and Resource Science, Akita University, now Hitachi Metals, Ltd, 1-1 Tegata Gakuen-machi Akita 010-8502)

2) 北海道大学大学院生 (現: (株) 木村铸造所) (Graduate School of Engineering, Hokkaido University, now Kimura Chuzoshio Co, Ltd)

3) 秋田大学大学院工学資源学研究所 (Graduate School of Engineering and Resource Science, Akita University)

* Corresponding author : E-mail : sasa@gipc.akita-u.ac.jp

DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane.99.126>

研究が多く成されてきたが、透過率を理論的に導出するのは、凝固中複雑に変化するデンドライト形態の評価が困難なため、難しいのが現状である。

本研究では鉄基三元系合金を対象として、まずデンドライト形態におよぼす添加元素の影響をフェーズフィールド法により予測することを試みた。その際、シミュレーションにより得られたデンドライト形態の定量的に評価するパラメータとして「フラクタル次元」²³⁾および「無次元周囲長」を導入し、得られた結果を用いて透過率の評価を試みた。

2. 方法

2・1 フェーズフィールドシミュレーション

2・1・1 フェーズフィールドモデル

フェーズフィールドモデルとしてKKSモデル²⁴⁾を用いた。フェーズフィールドの時間発展を記述する支配方程式は次式で表される。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M \left(\epsilon^2 \nabla^2 \phi - \frac{\partial f}{\partial \phi} \right) \quad (1)$$

ここで ϕ はフェーズフィールド、 M は易動度に、 ϵ は界面エネルギー（勾配エネルギー）に関係づけられるフェーズフィールドパラメーターである。 f は自由エネルギー密度関数で合金の場合、次式で表される。

$$f(\phi, c, T) = h(\phi) f^S(c_S, T) + (1 - h(\phi)) f^L(c_L, T) + W g(\phi) \quad (2)$$

ここで $f^S(c_S, T)$ および $f^L(c_L, T)$ は液相と固相の自由エネルギー、 C_S および C_L はKKSモデルにおいて等化学ポテンシャル条件から求められる界面領域での固相と液相の溶質濃度である。 $h(\phi)$ は固相率に対応した $h(\phi) = 0$ から $h(\phi) = 1$ を満たす単調増加関数で、次式で表される。

$$h(\phi) = \phi^3 (6\phi^2 - 15\phi + 10) \quad (3)$$

また、 $g(\phi)$ は界面の過剰自由エネルギーに対応しており、 $\phi = 0$ 、 $\phi = 1$ で極小値、 $\phi = 1/2$ で極大値を持つ関数である。一般に次式の二重井戸型ポテンシャルまたは放物線型ポテンシャルのどちらか一方が用いられる。

$$\text{二重井戸型ポテンシャル} \quad g(\phi) = \phi^2 (1 - \phi)^2 \quad (4)$$

$$\text{放物線型ポテンシャル} \quad g(\phi) = \phi (1 - \phi) \quad (5)$$

これまでは二重井戸型ポテンシャルが一般的に用いられてきたが、 $g(\phi)$ に放物線型ポテンシャルを用いることで界

面が明確になり、近づいた二つの界面が接触してしまうという現象を効果的に抑制できるという研究報告がなされている²⁵⁾。そのため、今回のシミュレーションでは $g(\phi)$ には放物線型ポテンシャル(5)式を用いた。また、 W は固相と液相の間のエネルギー障壁を表すフェーズフィールドパラメータである。

合金のフェーズフィールド計算では(1)式に加え、液相中と固相中の各溶質成分元素の濃度場の時間発展を計算する。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\frac{D(\phi)}{f_{cc}} \nabla f_c \right) \quad (6)$$

ここで c は濃度、 $D(\phi)$ は溶質の拡散係数、各式の下付添字はそれぞれの変数に対する1階あるいは2階の偏微分を表す。

フェーズフィールドパラメータ ϵ と W は固液界面エネルギー σ およびフェーズフィールドモデルにおける界面幅 λ と次式で関係づけられる。

$$\sigma = \frac{\epsilon \sqrt{2W}}{8} \pi \quad (7)$$

$$2\lambda = \frac{\epsilon}{\sqrt{2W}} \pi \quad (8)$$

また M については次式を用いた。

$$M^{-1} = \frac{\epsilon^2}{\sigma \sqrt{2W}} \left[\sum_j \frac{1}{D_{jL}} \zeta(c_j^S, c_j^L) \right] \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \zeta_j(c_j^S, c_j^L) &= \frac{RT}{V_m} (c_{jL}^e - c_{jS}^e)^2 \\ &\times \int_0^1 \frac{h(\phi) [1 - h(\phi)]}{[1 - h(\phi)] c_{jL}^e (1 - c_{jL}^e) + h(\phi) c_{jS}^e (1 - c_{jS}^e)} \\ &\times \frac{d\phi}{\sqrt{\phi(1-\phi)}} \quad (10) \end{aligned}$$

ここで、 R は気体定数、 T は温度、 V_m はモル体積、 C_{jL} と C_{jS} は各成分元素の液相と固相の平衡組成である。本解析ではTQ-インターフェースプログラムを介して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プログラムとThermo-Calcソフトウェアとを連動させることにより、計算に必要な三元系合金のデータを求めた。ここで、TQ-インターフェースとは自作のFORTRANプログラム中でThermo-Calcを操作するサブルーチンである。

固液界面エネルギーに関係づけられる異方性はフェーズフィールドパラメーター ϵ に導入され、立方晶金属の4回

転対称の場合次式で与えられる。

$$\varepsilon(\theta) = \varepsilon [1 + \delta \cos(4\theta)] \quad (11)$$

ここで、 δ は異方性強度、 θ は固液界面の法線方向と x 軸の成す角度である。

2・1・2 解析精度および数値計算条件

今回用いた KKS モデルでは、界面からの溶質拡散、質量保存の変化、化学ポテンシャルのずれのために界面近傍で異常な現象が生じることが指摘されている²⁶⁾。この問題に対処するために拡散方程式に補正項を設ける方法 (antitrapping current method)²⁷⁾ や、拡散場の界面幅を小さくする方法 (reduced interface method)²⁵⁾ が提案されている。本研究では後者の reduced interface method を用いて計算を行った。reduced interface method を用いた場合でも、メッシュサイズを大きくしすぎると計算結果に異常が現れたので、正常なデンドライト形態が得られる限界内のメッシュサイズを用いた。本研究で用いた要素サイズは $\Delta x = \Delta y = 1.0 \times 10^{-8} \text{ m}$ で、計算領域は、x 方向 1000 メッシュ、y 方向 1000 メッシュの 1000 × 1000 メッシュの均一要素に分解した正方形領域とし、そのサイズは $1.0 \times 10^{-5} \text{ m}$ である。また、界面領域長さは $2\lambda = 6.0 \times 10^{-8} \text{ m}$ とした。Fig.1 に計算領域の概略図を示す。計算領域左端の中心に初期固相を置き、初期生成核とした。境界条件は、計算領域の上下を周期境界条件、左右をフェーズフィールド勾配および濃度勾配を 0 とする 0 フラックス条件とした。Table 1 に計算に用いた物性値を示す^{28,29)}。Table 1 中の拡散係数はほとんどが Fe-X 二元系合金の値であり、また C の拡散係数に関しては、各合金の保持温度 1756℃ から 1722℃ の狭い温度範囲であるので、各合金の保持温度の平均値の値を用いた。

2・1・3 合金系および温度条件

本研究では Fe-0.35mass% C 合金に 0.40mass% の第 3 合金成分 (Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) を加えた Fe-0.35mass% C-

0.40mass%- (Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) の 7 つの合金を計算対象とした。7 つの合金とも Thermo-Calc の計算に基づき、Liquid + γ (fcc) 相領域で、平衡固相率が 0.75 となる温度で等温保持した時のデンドライト成長シミュレーションを行った。固相率を 0.75 とした理由は、固相率が低い過冷度では側枝が発達しづらく、また計算に時間がかかるからである。そこで予備計算の結果、側枝が良く発達し、かつ計算時間が適度である条件として固相率 0.75 を選んだ。Fig.2 に Thermo-Calc で計算した Fe-C-Cr 三元系合金の組成断面図を、Table 2 に各合金の組成と保持温度および過冷度を示す。

2・2 デンドライト形態の定量的評価法

本研究では計算により得られたデンドライト形態の複雑さを評価するためにフラクタル次元と無次元周囲長の二つのパラメータを用いた。

2・2・1 フラクタル次元

フラクタル理論は 1970 年代半ばにマンデルブローによって自己相似性を有するパターンを記述するために提唱された理論である。フラクタル特性を有するパターンは特徴的長さを持たない特徴があり、フラクタル的性質を有する図形を評価するために定義されたのが「フラクタル次元」である。デンドライト形態もフラクタル特性を持つことが報告されている^{21,22)}。

Table 1. Physical properties used for the simulation.

Properties	Unit	Values
molar volume, V_m	m^3/mol	7.7×10^{-6}
Interface energy, σ	J/m^2	0.204
Anisotropy, δ		0.03
Diffusivity in solid (C)	m^2/s	6.00×10^{-9}
Diffusivity in liquid (C)	m^2/s	2.00×10^{-8}
Diffusivity in solid (Cr)	m^2/s	1.05×10^{-11}
Diffusivity in liquid (Cr)	m^2/s	2.98×10^{-9}
Diffusivity in solid (Mn)	m^2/s	1.69×10^{-13}
Diffusivity in liquid (Mn)	m^2/s	5.85×10^{-11}
Diffusivity in solid (Mo)	m^2/s	3.46×10^{-12}
Diffusivity in liquid (Mo)	m^2/s	1.25×10^{-9}
Diffusivity in solid (P)	m^2/s	9.20×10^{-12}
Diffusivity in liquid (P)	m^2/s	1.26×10^{-9}
Diffusivity in solid (Si)	m^2/s	4.79×10^{-13}
Diffusivity in liquid (Si)	m^2/s	6.32×10^{-9}
Diffusivity in solid (V)	m^2/s	6.37×10^{-14}
Diffusivity in liquid (V)	m^2/s	7.84×10^{-9}
Diffusivity in solid (W)	m^2/s	3.75×10^{-12}
Diffusivity in liquid (W)	m^2/s	6.13×10^{-10}

Fig. 1. Calculation domain and boundary conditions for simulating dendrite growth in Fe base ternary alloys.

フラクタル次元を求める方法はいくつかあるが、本研究ではボックスカウント法²³⁾を用いてシミュレーションで得られたデンドライトのフラクタル次元を求めた。ボックスカウント法では、デンドライトを含む平面を1辺が r の正方形セルに分割する。そして、その平面上の固液界面を含むセルの総数を $N(r)$ とする。 r の大きさを変化させて $N(r)$ を測定し、下記に示す関係が成り立つ時当該図形はフラクタル特性を持ち、そのフラクタル次元は D になる。

$$N(r) \propto r^{-D} \quad (12)$$

(12) 式を対数プロットし、その傾きを最小二乗法で求めることによりフラクタル次元を決定した。

2・2・2 無次元周囲長

無次元周囲長の定義は次の通りである。まずシミュレーションにより得られたデンドライトの周囲の長さを L_d 、デンドライト固相の面積を S_d とする。 S_d と同一の面積を有する円の円周を L_c とする。無次元周囲長 L は次式で定義される。

Fig. 2. Calculated phase diagram of Fe-C-Cr ternary alloy by using the Thermo-Calc software.

Table 2. Compositions and holding temperatures of Fe base ternary alloys.

Alloys	Holding temp. (K)	Undercooling (K)
Fe-0.35mass%C-0.4mass%Cr	1756.0	26.3
Fe-0.35mass%C-0.4mass%Mn	1754.1	26.0
Fe-0.35mass%C-0.4mass%Mo	1753.7	28.3
Fe-0.35mass%C-0.4mass%P	1722.9	49.2
Fe-0.35mass%C-0.4mass%Si	1748.2	30.5
Fe-0.35mass%C-0.4mass%V	1752.7	29.1
Fe-0.35mass%C-0.4mass%W	1754.9	27.9

$$L = \frac{L_d}{L_c} \quad (13)$$

フラクタル次元、無次元周囲長ともその値が大きいほどデンドライト形態が複雑であると言える。

3. 結果および考察

3・1 デンドライト形態

Fig.3にそれぞれの合金系の固相率が0.3になった時のシミュレーションによって得られたデンドライト形態を示す。添加元素の違いによってデンドライトの形態に差が現れている。Pを添加した合金が最も側枝が良く発達し、複雑なデンドライト形態になっている。一方、Mnを添加した合金では側枝の発達がほとんど見られない。その他の元素を添加した合金では観察から形態の複雑さを評価するのは困難である。

3・2 フラクタル次元および無次元周囲長による評価

Fig.4にデンドライトの成長過程における固相率 f_s の増加による各合金のデンドライトのフラクタル次元 D_f の変化を示す。固相率の増加と共に各合金のフラクタル次元は増加し、デンドライト形態が複雑になっている。同一の固相率で比較するとP添加の合金のフラクタル次元が最も大きく、Mn添加の合金のフラクタル次元が最も小さい値を示し、定性的観察結果と一致している。また、それ以外の合金では、フラクタル次元は近い値を示しているが、合金によって差があることが定量的に示されている。

Fig.4において $f_s = 0.01$ 付近の成長初期のデンドライト形態のフラクタル次元に急激な変化が観察される。これは、ボックスカウント法でフラクタル次元を求める際にセル1辺の長さ r を変化させるが、成長初期の段階で固相よりも大きい r を用いて $N(r)$ を求めると、 $N(r) = 2$ から $N(r) = 3$ といった、少ない $N(r)$ 間で誤差が生じ易いことによる。

Fig.5に固相率増加に伴う無次元周囲長の変化を示す。フラクタル次元と同様にデンドライトの成長に伴い各合金の無次元周囲長は増加している。また同一固相率での各合金の無次元周囲長の値はP添加合金が最も大きく、Mn添加合金が最も小さい値を示し、その間はFig.4に示されているフラクタル次元と同じ順で変化しているのが分かる。2次元のフラクタル次元の範囲は $1 < D_f < 2$ であるのに対し、無次元周囲長は1~11の範囲で変化しており、各合金の値の差がフラクタル次元と比較してより明瞭に見て取れる。Fig.4とFig.5の結果より各合金のデンドライト形態は $P > V > Si > Cr > Mo > W > Mn$ の順に複雑になっていることが分かる。

3・3 デンドライト形態を規定する要因

添加元素の違いがデンドライト形態の差を生じる理由

Fig. 3. Simulated dendrite morphology of Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys by phase-field method.

Fig. 4. Change in the fractal dimensions of dendrites in Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys along with change in solid fraction.

Fig. 5. Change in the dimensionless perimeter of dendrites in Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys along with change in solid fraction.

を検討してみる。デンドライト形態を大きく規定する要因として固液界面エネルギーがある。固液界面エネルギーが大きいほど界面の面積が減少し、デンドライト側枝の発達が抑制される。しかし、三元系合金の組成に応じた正確な固液界面エネルギーの値が得られなかったために、今回のシミュレーションでは純鉄の値をすべての合金に用いている。従って今回のシミュレーションにおいてデンドライト形態を規定した要因として次の三つが考えられる。

- ・液相内の拡散係数
- ・平衡分配係数
- ・保持温度と過冷度

上の二つは組成的過冷却を規定する要因であり、液相内の拡散係数と平衡分配係数が小さい程組成的過冷却は増大し、固液界面は不安定の増大により側枝の発達が促進されることが予想される。また、今回のデンドライト成長シミュレーションは各合金の固相率が0.75と等しくなる温度で保持しているために、液相線温度からの温度降下および過冷度は合金により異なるので、この要因がデンドライト形態を規定した可能性が考えられる。

Fig.6にシミュレーションで用いた液相内および固相内

の各元素の拡散係数を示す。図の左から右にフラクタル次元が大きくなった順に元素を並べている。液相内の拡散係数はデンドライト形態が複雑な合金ほど拡散係数が大きくなる傾向にあるが、最もデンドライト形態が複雑であったPでは減少している。一方、固相内拡散係数はばらついており、特に相関性は認められない。このように拡散係数のみではシミュレーションの結果を説明できない。

Fig.7にThermoCalcで求めた各合金における第3元素と炭素の平衡分配係数を示す。三元系合金では第3元素との相互作用で炭素の平衡分配係数も変化するが、その変化量は小さいことが分かる。一方、第3元素の平衡分配係数はデンドライトが最も複雑であったPが一番小さい値を示しており、フラクタル次元が高い合金ほど第3元素の平衡分配係数は小さくなる傾向を示しているが、Mn, W, MoとCr, Si, V, Pの二つのグループに分かれている。

Fig.8に各合金の保持温度を、Fig.9にその時の過冷度を示す。保持温度の減少は拡散係数の減少を意味し、過冷度の増加は側枝の発達を促すと考えられる。デンドライト形態が最も複雑であったP添加合金はこの条件に一番合致する。残りの6元素はフラクタル次元の増加と共に保持温度

Fig. 6. Comparison of diffusion coefficients in liquid and solid of the third alloying elements of Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys.

Fig. 7. Comparison of the partition coefficients of carbon and third elements in Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys.

Fig. 8. Comparison of the holding temperatures during the growth simulation of dendrites in Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys.

Fig. 9. Comparison of the degree of undercooling during the growth simulation of dendrites in Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys.

の減少と過冷度の増加の傾向を若干示しているが、それ程著しいものではない。

以上の結果から、添加元素の違いでデンドライト形態が変化するのは、一つの要因で決まったのではなく、各要因が複合した総合作用により、デンドライト形態が変化したものと推察される。

3・4 透過率の見積もり

フェーズフィールドシミュレーションで得られたデンドライト形態から、透過率を評価することを試みた。凝固過程の合金のデンドライト間隙を流れる液相の平均流速 v は一般に多孔質媒体中の流れを記述するDarcyの式で表される。

$$v = \frac{K}{\mu L} \Delta P \quad (14)$$

ここで K は透過率 (m^2)、 μ は粘性係数 ($Pa \cdot s$)、 L は多孔質媒体の幅 (m)、 ΔP (Pa) は多孔質媒体内の圧力降下を

表す。Piwonka and Flemingsは固液共存領域をFig.10に示すように、複数の円管の流路を持つ多孔質媒体として取り扱い、円管内の流れを記述するハーゲンポアズイユ (Hagen-Poiseuille) の式に基づいて、デンドライト間隙を流れる流体の透過率を次のように導出した³⁰⁾。

$$K = \frac{g_L^2}{8n\pi\tau^3} \quad (15)$$

ここで g_L は液相率、 n は単位断面積当たりの流路数である。 τ はFig.10に示すように流路が直線ではないことを表す因子 (tortuosity factor) で、次式で表される。

$$\tau = \frac{L_e}{L} \quad (16)$$

ここで L_e (m) は円管流路を直線にした時の長さである。

Fig.11に示すように柱状1次デンドライトアームに平行

Fig. 10. Schematic illustration of the Hagen-Poiseuille model for estimating the permeability of the mushy zone of a solidifying alloy.

Fig. 11. Schematic illustration of interdendritic liquid flow parallel and normal to primary dendrite arms.

な流れの場合には1流路の領域の断面積は $\lambda_1 \times \lambda_1$ で表されるので、単位断面積当たりの流路数 n は次式で与えられる。

$$n = \frac{1}{\lambda_1 \times \lambda_1} \quad (17)$$

また柱状1次デンドライトアームに垂直な流れの場合には次式で表される。

$$n = \frac{1}{\lambda_1 \times \lambda_2} \quad (18)$$

ここで λ_1 は1次デンドライトアーム間隔、 λ_2 は2次デンドライトアーム間隔である。本解析ではFe-C合金における実測値³¹⁾、 $\lambda_1 = 370 \mu\text{m}$ 、 $\lambda_2 = 35 \mu\text{m}$ を用いた。

(15) 式のtortuosity factorはデンドライト形態の複雑さに対応するので、フラクタル次元および無次元周囲長に

Table 3. Experimental conditions for the measurement of permeability.

Researchers	Alloys	Conditions
D. Apelian, et al. ³²⁾	Al-4%Si	$f_L = 0.06 \sim 0.345$ Equiaxed
N. Streat, et al. ³³⁾	Pb-20wt%Sn alloy	$f_L = 0.19$ Columnar parallel flow $\lambda_1 = 28 \sim 175 \mu\text{m}$
K. Murakami, et al. ^{36,37)}	Borneol-paraffin organic alloy	$f_L = 0.26 \sim 0.66$ Columnar parallel flow normal flow $\lambda_1 = 420, 320 \mu\text{m}$ $\lambda_2 = 115, 90 \mu\text{m}$
R. Nasser-Rafi, et al. ³⁸⁾	Pb-20wt%Sn alloy	$f_L = 0.17 \sim 0.31$ Columnar parallel flow normal flow $\lambda_1 = 100 \sim 300 \mu\text{m}$ $\lambda_2 = 40 \sim 110 \mu\text{m}$
T. Takahashi, et al. ³⁵⁾	Carbon steel	$f_L = 0.30 \sim 0.75$ Equiaxed free surface at the top

比例すると考えられる。そこで最も簡単な仮定として、tortuosity factorはフラクタル次元、あるいは無次元周囲長の値にそのまま等しいとし、この二つのケースに関して解析を行った。シミュレーションから得られる液相率とフラクタル次元、および無次元周囲長と、(17) 式と (18) 式から得られる n の値を (15) 式に代入することにより、凝固に伴う透過率の変化を計算した。

tortuosity factorとしてフラクタル次元を適用した場合と無次元周囲長を適用した場合のそれぞれの結果を実測値³²⁻³⁹⁾と対応させてFig.12, Fig.13に示す。また、各実験条件の詳細をTable 3に示す。なお、Apelian³²⁾らとTakahashiらの結果³⁵⁾は一次デンドライトに平行方向 (parallel flow) と垂直方向 (Normal flow) の両方に示しているが、これは彼らが等軸晶デンドライト間隙を流れる透過率を測定しており、1次デンドライトアームに平行や垂直な方向を定めることが不可能なためである。

図中矢印ではさまれた曲線が本解析で求めた7つの合金の透過率を示している。ここで、フェーズフィールド法による課題として、シミュレーションで得られる範囲は低液相率側でおよそ $f_L = 0.6$ であるのに対し、実験での透過率を測定する場合、およそ $f_L = 0.3$ から $f_L = 0.7$ の範囲で行われている。そこで今回、実測透過率と比較を行うために、本解析では計算終了時のフラクタル次元および無次元周囲長の値を凝固組織の最終的なtortuosity factorの値と仮定し、その値を用いて低液相率側まで透過率を外挿した。外挿線は透過率の最も大きいFe-C-Mn合金および最も小さいFe-C-P合金に破線で示している。

Fig.12から本解析で求めた透過率は全ての合金系でほぼ等しい値をとり、また1次デンドライトアームに平行に流

Fig. 12. Comparison of calculated and measured permeability for parallel and normal flow to primary dendrite arms. Calculated permeability in Fe-base-ternary alloys are estimated by regarding the fractal dimensions of dendrites as the tortuosity factor of the Hagen-Poiseuille model for estimating the permeability of a mushy zone during the solidification of an alloy.

Fig. 13. Comparison of calculated and measured permeability for parallel and normal flow to primary dendrite arms. Calculated permeability in Fe-base-ternary alloys are estimated by regarding the dimensionless perimeters of dendrites as the tortuosity factor of the Hagen-Poiseuille model for estimating the permeability of a mushy zone during the solidification of an alloy.

れる場合よりも垂直に流れる場合の方が小さい値を示している。実測透過率と比較すると、tortuosity factorにフラクタル次元を用いた場合、どの実測値とも一致していない。

tortuosity factorに無次元周囲長を用いて導出したFig.13でも、Fig.12と同様に1次デンドライトアームに平行に流れる場合よりも、垂直に流れる場合の方が透過率は小さい値を示している。各実測透過率との比較において、本解析透過率の外挿した範囲内に1次デンドライトアーム間隔に平行に流れる場合にはMurakamiら、N.Streatら、Nasser-Rafiらと、垂直に流れる場合にはMurakamiら、Nasser-Rafiら、Apelianらの実測透過率を含んでいる。

tortuosity factorとして無次元周囲長を用いると実測値と近い値を示した理由を考察する。実測の透過率値を式(15)に代入し、その時のtortuosity factorの値を逆算すると2~7の範囲内で推移している結果となった。この範囲はFig.5のシミュレーションによる無次元周囲長の範囲1~11と対応している。これは無次元周囲長の定義とtortuosity factorの定義の類似性から理解することが出来る。一方、2次元の図形のフラクタル次元は1~2の範囲であるために、フ

ラクタル次元をそのままtortuosity factorとして取り扱うには、無理のあることが分かる。

最後に本研究は2次元シミュレーションの結果に基づいており、これが実際の3次元でのデンドライト形態の複雑さを表現できているかは定かではない。計算時間の問題が有るが、今後3次元の計算へと発展させ、2次元の結果と比較検討する必要がある。

4. 結言

Fe-C-X (X = Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) 3元系合金の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を行い、鋼のデンドライト形態におよぼす添加元素の影響を調査した。デンドライト形態はフラクタル次元と無次元周囲長の二つのパラメータで評価した。また、シミュレーションにより得られたフラクタル次元と無次元周囲長から透過率を評価することを試みた。得られた知見は以下の通りである。

(1) シミュレーションで得られた各合金のデンドライト

形態のフラクタル次元および無次元周囲長の値は、 $P > V > Si > Cr > Mo > W > Mn$ の順となり、これらのパラメータはデンドライト形態の複雑さを評価するパラメータとして有効であることを示した。

(2) 各第3元素のデンドライト形態に与える影響は平衡分配係数、液相および固相内の拡散係数、状態図変化（保持温度と過冷度の変化）のパラメータの総合効果として現れたものと考えられる。

(3) デンドライト間隙の液相流路をハーゲンポアズイユ (Hagen-Poiseuille) の式で取り扱う透過率のモデル式におけるねじれ因子 (tortuosity factor) に無次元周囲長を用いると実測の透過率に対応する値が得られたが、ねじれ因子 (tortuosity factor) にフラクタル次元を用いると、得られた透過率値は実測値と一致しなかった。

文 献

- 1) M.C.Flemings and G.E.Naero: *Trans AIME*, **239** (1967), 1449.
- 2) M.C.Flemings, R.Mehrabian and G.E.Naero: *Trans AIME*, **242** (1968), 242.
- 3) R.Mehrabian, M.Keane and M.C.Flemings: *Metall. Trans.*, **1** (1970), 1209.
- 4) N.Streat and F.Weinberg: *Metall. Trans.*, **5** (1974), 2539.
- 5) K.Suzuki and G.Miyamoto: *Tetsu-to-Hagané*, **63** (1977), 53.
- 6) S.Asai, T.Sato and I.Muchi: *Tetsu-to-Hagané*, **63** (1977), 1512.
- 7) K.Suzuki and G.Miyamoto: *Tetsu-to-Hagané*, **63** (1979), 1571.
- 8) T.Fujii, R.Poirier and M.C.Flemings: *Metall. Trans. B*, **10B** (1979), 331.
- 9) H.Nomura, Y.Tarutani and K.Mori: *Tetsu-to-Hagané*, **67** (1981), 80.
- 10) H.Nomura, Y.Tarutani and K.Mori: *Tetsu-to-Hagané*, **67** (1981), 88.
- 11) K.Miyazawa and K.Schwerdtfeger: *Arch. Eisenhüttenwes.*, **52** (1981), 415.
- 12) I.Ohnaka and M.Matsumoto: *Tetsu-to-Hagané*, **73** (1987), 86.
- 13) T.Kajitani, J-M.Drezet and M.Rappaz: *Metall. Mater. Trans. A*, **32A** (2001), 1479.
- 14) C.Beckermann: *Int. Mater. Rev.*, **47** (2002), 243.
- 15) G.Lesoult: *Mater. Sci. Eng.*, **A413-414** (2005), 19.
- 16) T.Sawada, K.Oikawa, K.Anzai, F.Takahashi, K.Kajikawa and H.Yamada: *J. JFS.*, **81** (2009), 177.
- 17) K.K.Ray and G.Mandal: *Acta. Metall. Mater.*, **40** (1992), 463.
- 18) T.Nishihara: *J. Jpn. Inst. Met.*, **57** (1993), 209.
- 19) M.Ando and T.Nishihara: *J. Jpn. Inst. Met.*, **60** (1996), 775.
- 20) A.G-Carracedo, C.A-Lorenzo, R.Coca, R.M-Pacheco, A.Concheiro and J.L.G-Amoza: *Acta. Mater.*, **57** (2009), 295.
- 21) L.Sun, Q.Wu, J.Zhang and Z.Hu: *J. Mater. Sci. Tec.*, **10** (1994), 229.
- 22) A.Yang, Y.Xiong and L.Liu: *Sci. Tec. Adv. Mater.*, **2** (2001), 101.
- 23) M.Matsushita: Furakutaru no Buturi, Shokabou (2002), 36.
- 24) S.G.Kim, W.T.Kim and T.Suzuki: *Phys. Rev E*, **60** (1999), 7186.
- 25) S.G.Kim, W.T.Kim and T.Suzuki: *J. Cryst. Growth*, **263** (2004), 620.
- 26) R.F.Almgren: *SIAM Appl. Math.*, **59** (1999), 2086.
- 27) A.Karma: *Phys. Rev. Lett.*, **87** (2001), 115701.
- 28) Tekko-no-Gyoko, ISIJ, (1977), fu-16.
- 29) Kinzoku-de-ta Bukku, Maruzen, (2004), 20.
- 30) T.S.Piwonka and M.C.Flemings: *Trans AIME*, **236** (1966), 1157.
- 31) Tekko-Binran 4th edition, ISIJ, Maruzen, (2002).
- 32) D.Apelian, M.C.Flemings and R.Mehrabian: *Metall. Trans.*, **5** (1974), 2523.
- 33) N.Streat and F.Weinberg: *Metall. Trans.*, **7B** (1976), 417.
- 34) T.Takahashi, M.Kudoh and K.Yodoshi: *J. Jpn. Inst. Met.*, **43** (1979), 1086.
- 35) T.Takahashi, M.Kudoh and S.Nagai: *Tetsu-to-Hagané*, **6** (1982), 623.
- 36) K.Murakami, T.Shiraishi and T.Okamoto: *Acta Metall.*, **31** (1983), 1417.
- 37) K.Murakami, T.Shiraishi and T.Okamoto: *Acta Metall.*, **32** (1984), 1423.
- 38) R.Nasser-Rafi, R.Desamukh and D.R.Poirier: *Metall. Trans.*, **16A** (1985), 2263.
- 39) D.R.Poirier: *Metall. Trans.*, **B18** (1987) 245.