

入門講座

鋼の凝固入門ー7

凝固シミュレーションⅡ 凝固組織形成モデル

Solidification Simulation II : Numerical Simulation Model
for Solidification Microstructures

栢 千修

Yukinobu Natsume

秋田大学 大学院工学資源学研究科
材料工学専攻 講師

1 はじめに

金属材料の凝固組織は、初晶デンドライトが等軸あるいは柱状に成長して形成した結晶粒組織や2相が協調成長して形成した共晶組織等である。デンドライト成長による凝固組織形成過程では、デンドライト間隙に溶質元素が濃化し、ミクロ偏析が形成する。固液共存状態での凝固組織は、マクロ偏析の形成に影響を与える。このように凝固組織は、金属材料の品質に影響を及ぼす casting defects の形成に深く関わる。そのため、凝固組織の形態や形成過程を理解することは、材質制御の観点から極めて重要である。

近年、多くの分野で数値シミュレーション技術が発達し、凝固分野においても凝固伝熱のようなマクロスケールの数値シミュレーションから、凝固組織形成のようなミクロスケールの数値シミュレーションまで、様々な数値シミュレーションが行われている。本稿では、凝固組織形成の数値シミュレーション手法として最近その多様性が注目されているフェーズフィールド法 (PF法) とセルオートマトン法 (CA法) について、モデルの基礎と計算結果の一例を紹介する。

2 フェーズフィールド法

2.1 凝固のフェーズフィールドモデル

PF法は、小林¹⁾のデンドライト成長シミュレーションの成功を機に、多くの研究者に注目され急速に発展している。PF法の最大の利点は、異相界面 (凝固の場合は固相と液相など) の移動を取り扱う手法でありながら、界面位置を直接追跡する必要が無いことである。これは、多くの移動界面の問題の取り扱いを容易にする。PF法では相の状態を表現するための秩序変数 ϕ (フェーズフィールドと呼ばれる) を導入する。凝固問題では、例えば、固相を $\phi = 1$ 、液相を $\phi = 0$ と

し、その間の領域 ($0 < \phi < 1$) を界面と考える。界面領域では固相から液相へ ϕ は連続的かつ滑らかに分布する。このような有限厚さの界面は“diffuse interface”と呼ばれ、厚さ0のsharpな界面を考える自由境界問題に比べ、複雑な界面形状を容易に取り扱うことができる。すなわち、 $\phi = 0.5$ を界面位置と仮定すると界面形状は、その等値線 (2次元) や等値面 (3次元) に相当するからである (図1)。ただし、PF法によって得られる解が妥当なものであるかは、Gibbs-Thomson効果 (曲率効果) を考慮した自由境界問題で得られる解との比較検証が必要である。初期のPF法では、自由境界問題を満足させるために“sharp interface limit”と呼ばれる条件が使われた。これは、界面厚さを限りなく0に近づけることであり、有限厚さの界面領域を持つPF法の原理上、計算要素サイズは極めて小さなものを使わなければならない。必然的に計算条件は、数百℃の超高過冷度であるなど、実際の casting での凝固条件とは大きくかけ離れた条件でしか計算できなかった。この問題は、Karmaら²⁾による純物質モデルの中で“thin

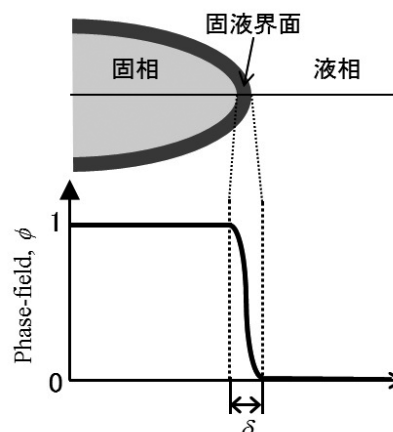


図1 PF法の界面の取り扱い

interface limit”と呼ばれる新たな条件によって解決され、実際の凝固条件での定量的な計算が可能となった。合金凝固のモデルは、Wheeler, Boettinger, McFadden (WBMモデル³⁾と呼ばれる) によって最初に提案された。WBMモデルは、純物質における温度を濃度に置きかえて改良されたモデルである。WBMモデルは、“sharp interface limit”の条件を使用していることから、初期設定する界面幅によって異なる解が得られてしまうという問題もあった。また、WBMモデルに“thin interface limit”の条件を適用すると、界面領域に熱力学的に不自然な過剰エネルギーが発生するなどの問題も指摘された。しかしながら、合金の先駆的なモデルとして重要なモデルである。このような合金凝固のモデルの問題を解決したのが、Kim, Kim, SuzukiによるKKSモデル⁴⁾である。KKSモデルは界面領域では固相と液相の化学ポテンシャルが等しいという条件を導入して、上記の不自然な過剰エネルギー発生の問題を解決した。KKSモデルによって合金凝固の計算が定量的に行えるようになった。それでもなお、界面領域からの溶質拡散、界面伸縮による質量保存の変化、solute trapping現象といった異常現象が界面近傍で発生し、計算条件によって結果が異なることが確認された⁵⁾。これはdiffuse interfaceに起因するものであり、Karmaら^{6,7)}は、固相内拡散が0の合金系を仮定して、界面での質量保存が正確に満足させる方法を提案した。これは、質量保存の関係式に現れる過剰項を消滅させる新たな項 (anti-trapping current) を拡散方程式に導入する方法である。このモデルは、定量的フェーズフィールドモデル (QPFM) と呼ばれている。さらに大野ら⁸⁾は、QPFMを固相内拡散が0でない合金系で適用可能なモデルに拡張し、Fe-C合金のような固相内拡散の考慮が必要な合金系での定量的な評価を可能とした。その他、多元系合金のモデル⁹⁾、共晶・包晶系などの多相合金のマルチフェーズフィールド法 (MPF法)^{10,11)}、ファセット成長のモデル¹²⁾等、凝固組織に対する多く問題にPF法が適用可能になっている。

2.2 合金凝固のモデル

前節で述べたように、合金凝固の基本モデルの1つはKKSモデルである。本節ではKKSモデルによる2元系合金のPF法の概略を説明する。なお、詳細 (数式の導出等) は、原論文⁴⁾や解説¹³⁾、教科書¹⁴⁾等を参照して頂きたい。

凝固のPF法の発展方程式は、フェーズフィールド ϕ 、溶質濃度 c 、温度 T に関する3つの方程式である。この3式を連立して解くことで、各時間での ϕ 、 c 、 T の分布を得ることができる。それぞれの時間発展方程式を以下に示す。

ϕ の時間発展は、系の全自由エネルギー F の変分に比例する形式で以下のように記述され、フェーズフィールド方程式と呼ばれる。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -M \frac{\delta F}{\delta \phi} \quad (1)$$

$$F = \int_V \left(f(\phi, c, T) + \frac{\varepsilon^2}{2} (\nabla \phi)^2 \right) dV \quad (2)$$

$$f(\phi, c, T) = h(\phi) f^S(c_S) + [1 - h(\phi)] f^L(c_L) + Wg(\phi) \quad (3)$$

ここで、 f^S 、 f^L は、固相及び液相の自由エネルギーであり、 c_S 、 c_L は、固相及び液相の溶質濃度である。 $h(\phi)$ は界面領域において $\phi=0$ から $\phi=1$ へ単調増加する内挿関数であり、 $h(\phi) = \phi^3 (10 - 15\phi - 6\phi^2)$ が使われる。 $g(\phi)$ は、凝固による相変態の障壁エネルギーに対応し、二重井戸型の $g(\phi) = \phi^2 (1 - \phi)^2$ が使われる。 ε 、 W 、 M はフェーズフィールドパラメータと呼ばれ定量的な計算結果を得る上で重要なパラメータである。これらのパラメータについては次節で説明する。

c の時間発展は、以下の拡散方程式で記述される。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\frac{D(\phi)}{\partial^2 f / \partial c^2} \nabla \frac{\partial f}{\partial c} \right) \quad (4)$$

ここで、 $D(\phi)$ は、 ϕ の分布に依存した拡散係数であり、固相、液相の領域では、各相の拡散係数が用いられる。KKSモデルでは、固相と液相の溶質濃度を c_S と c_L により区別し、界面領域での平均濃度 c は以下の式で与えられる。

$$c = h(\phi) c_S + [1 - h(\phi)] c_L \quad (5)$$

また、界面領域において化学ポテンシャルが等しいことを仮定する。この仮定が界面領域での溶質濃度の取り扱いを熱力学的に明解にしたKKSモデルの最大の意義である。

$$\frac{\partial f}{\partial c_S} = \frac{\partial f}{\partial c_L} \quad (6)$$

T の時間発展は、以下の凝固熱伝導方程式で記述される。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \nabla^2 T + \frac{L}{C_p} \frac{\partial h(\phi)}{\partial t} \quad (7)$$

ここで、 α は熱拡散率、 C_p は比熱、 L は凝固潜熱である。合金の凝固では、溶質拡散律速で界面が移動し、熱拡散率が溶質拡散係数よりも数オーダー大きく計算の時間刻みが極めて小さくなること等から、凝固熱伝導方程式を連成させず、各メッシュに直接温度や冷却速度を与える場合が多い。連成する場合には、マルチグリッド法などの工夫が必要である¹⁵⁾。

2.3 フェーズフィールドパラメータ

3つのフェーズフィールドパラメータ ε 、 W 、 M は、材料物性値及び界面幅と結びつけて導出される。 ε は勾配エネルギー係数であり、 W は固相から液相へ相転移するときの障壁エネルギーの高さに関係する係数である。これらの係数と界面エネルギー γ 、界面幅 δ の関係は以下になる。

$$\gamma = a_1 \varepsilon \sqrt{W} \quad (8)$$

$$\delta = a_2 \frac{\varepsilon}{\sqrt{W}} \quad (9)$$

ここで、 a_1 、 a_2 は、内挿関数 $h(\phi)$ 、 $g(\phi)$ によって決まる定数である。すなわち、界面エネルギーと界面幅を与えることで自動的に2つのパラメータ ε 、 W は決定される。 M は界面の移動度を表すパラメータである。ここでは詳細は割愛するが、thin interface limitでは、界面の動力学的効果に起因する項と溶質の分配、拡散に起因する項の和で構成されている⁴⁾。全てのフェーズフィールドパラメータは、測定可能な物性値と各計算要素の温度、濃度から決定されるため、実験で物性値が得られていれば定量的な評価が可能となる。

デンドライトのように異方性のある結晶成長を取り扱う場合は、界面エネルギーあるいは移動度に異方性を与える必要がある。物理的な意味が明解であることから、一般的に界面エネルギーに関連する勾配エネルギー係数 ε に異方性を与えることが多く4回対称性を考慮して ε は以下のように表される。

$$\varepsilon = \varepsilon_0 (1 + \varepsilon_4 \cos(4\theta)) \quad (10)$$

ここで、 ε_0 は異方性が無い時の勾配エネルギー係数、 ε_4 は異方性の強さを与えるパラメータ、 θ は界面法線ベクトルと x 軸との角度である。なお、この形式は2次元の異方性である。

2.4 PF法によるデンドライト成長

前節で説明した発展方程式とフェーズフィールドパラメータを用い、初期条件を与えることで、PFシミュレーションが可能である。発展方程式を離散化し、差分方程式を解くだけであるため比較的プログラムも簡単である。

凝固のPF法で最も代表的なシミュレーションは、デンドライト成長シミュレーションである。最近、スパコンを用いたデンドライト成長の超大規模計算も行われている¹⁶⁾。計算機性能も向上してきたが、PF法は計算コストが比較的高く、現在のPC用CPUでは、まだ高々数本のデンドライトを対象とするのが限界である。しかし、数本のデンドライト成長でも有益な情報は得られる。特に、2次枝間隔予測やデンドライト間隙のマイクロ偏析パターン予測などは、現状でも十分に行える。図2は、Al-Si合金の2次枝成長のシミュレーション

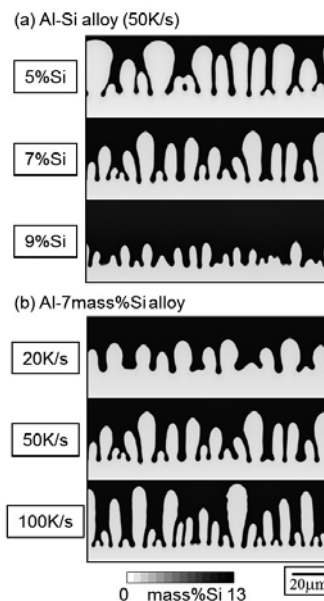


図2 PF法によるデンドライト2次枝成長の計算例
(a) Al-Si合金、冷却速度50K/s (b) Al-7mass% Si合金

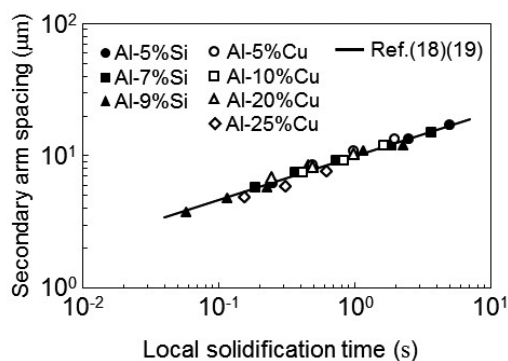


図3 PF計算によるAl基合金の2次枝間隔と部分凝固時間の関係

結果の一例である¹⁷⁾。合金組成や冷却速度によって2次枝間隔や形態が変化していることがわかる。これらの結果を整理し、部分凝固時間と2次枝間隔の関係を示したものが図3である。シミュレーション結果は、実験報告^{18,19)}と非常に良い一致を示し、PF法の2次枝間隔予測の有効性が確認できる。ここでは、デンドライト成長シミュレーションの一例のみを示したが、PF法のポテンシャルは高く有効に活用した例は数多く報告されている。

3 セルオートマトン法

CA法は、空間をセルで敷き詰め、隣のセルとの相互作用を繰り返すことで複雑な模様やパターンを作り出す手法である²⁰⁾。局所的な相互作用として極めて単純な条件を与えるだけで、自然界でみられる複雑な模様が自動的に形成される。

いわゆる「自己組織化」である。「自己組織化」が関係する現象は、生物の複雑な模様や雲の形、激しい川の流れ（乱流）など身の回りにも沢山ある。材料組織もその一つであり、結晶粒組織やデンドライトは、まさに「自己組織化」の結果であるだろう。

3.1 凝固のセルオートマトンモデル

凝固のセルオートマトンモデルは、1990年代前半に提案されたマクロ凝固組織形成のモデル（ここでは「マクロスケールCA法」と呼ぶ）と1990年代後半に提案されたミクロ凝固組織形成のモデル（ここでは「メソスケールCA法」と呼ぶ）がある。

マクロスケールCA法は、RappazとGandinにより最初のモデル²¹⁾が提案された。彼らは、粒選択や柱状晶-等軸晶遷移（CET）を予測するために結晶粒組織を対象とした。従って、デンドライト成長そのものではなく、デンドライト先端を覆ったDendrite Envelope (DE) をデンドライト成長する結晶粒と仮定して、その結晶粒成長モデルにCA法を適用した（図4）。複数の結晶粒を取り扱うための核生成モデルも導入し、実際のマクロ凝固組織に類似した結晶粒組織パターンを得ることに成功した。その後、Gandinらは、有限要素法による凝固伝熱解析とのカップリング（CA-FEモデル²²⁾と呼ばれる）や結晶粒成長モデルの修正^{22,23)}、3次元への拡張²⁴⁾を行い、基本モデルを確立した。現在、偏析予測^{25,26)}への応用等の研究が進められている。

メソスケールCA法は、Nastac²⁷⁾によって提案されたデンドライト成長のモデルが比較的初期のモデルである。フロントトラッキング法として提案されているモデルもあるが、原理的にはメソスケールCA法に分類される。初期のモデルでは、デンドライト形状の精度がPF法に比べ劣るところもあったが、精度が向上したモデルも提案され現状ではPF法のように自然な形態がシミュレートできる^{28,30)}。この手法の

最大の利点は、界面厚さを0と定義するためPF法のような要素サイズの制約が無く、比較的広領域の凝固組織形成シミュレーションが可能なことである。すなわち、この手法は、Gibbs-Thomson効果を考慮して自由境界問題を解くことに相当する。要素サイズを小さくすれば、界面位置および形状を精度良く計算することが可能であり、デンドライト成長理論や実験との比較によりモデルの妥当性も評価されている³⁰⁾。ただし、要素サイズを大きくしすぎると、界面曲率が正確に表現できなくなり成長方向や界面形態が格子に依存したものになってしまう。これは格子異方性と呼ばれている。この手法では格子異方性が計算結果へ影響しないような要素サイズを選択することが重要である。メソスケールCA法はまだ発展途上であるが、ミクロ組織と気泡形成のモデリングなど³¹⁾も研究されている。

3.2 マクロスケールCA法

CA法を用いた凝固組織形成モデルは、Rappazらによって初めて提案された²¹⁾。この手法の基本的な考え方は、以下の通りである。まず、計算領域を正方形セルに分割する。各セルの過冷度に応じて核を発生させ、その核をデンドライト成長の規則で結晶粒成長させる。複数の結晶粒が同一の規則で形成され、最終的にマクロ凝固組織になる。すなわち、この手法は、核生成と結晶粒成長のモデルから構成されていることになる。

核生成モデルは、異質核生成を仮定し、核密度 n を過冷度によるガウス分布として以下のように与える。

$$\frac{dn}{d(\Delta T)} = \frac{n_{\max}}{\sqrt{2\pi}\Delta T_{\sigma}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\Delta T - \Delta T_{\max}}{\Delta T_{\sigma}}\right)^2\right] \dots\dots\dots (11)$$

ここで、 ΔT は対象セルにおける過冷度、 $n_{\max}$ は最大核密度、 ΔT_{σ} は標準偏差、 $\Delta T_{\max}$ は平均過冷度である。鑄壁とバルクでは核生成頻度が異なることを考慮し、それぞれの場合で分けて評価する（図5）。このとき、鑄壁での核生成密度は単位面積あたりで評価し、バルクでは単位体積あたりで評価する。 $n_{\max}$ 、 ΔT_{σ} 、 $\Delta T_{\max}$ の3つが核生成を評価するパラメータとなるが、物性値では無いため冷却曲線などの実測データに基づいて妥当な基準を決めて評価しなければならない。

結晶粒成長モデルは、デンドライト成長する結晶粒の成長モデル（DE成長のモデル）である。従って、デンドライト成長の規則が反映されていなければならない。そこで、Rappazらが最初に提案した結晶粒成長アルゴリズムは、デンドライト先端を小さな正方形の頂点と仮定し、デンドライト先端成長理論（KGTモデル³²⁾）に基づいて結晶粒を成長させる square growth algorithm²¹⁾であった。このアルゴリズム

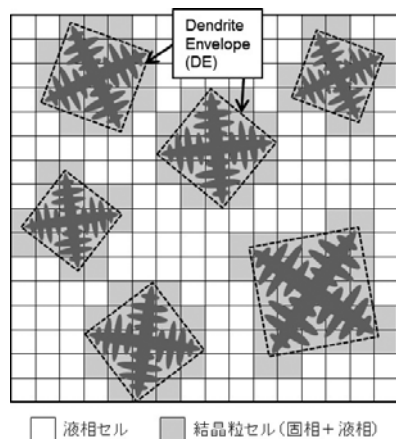


図4 マクロスケールCA法で取り扱うセルと結晶粒の関係

は、DEとして成長させた正方形の一辺が成長によって隣接セルの中心を捕捉すると、そのセルを次の結晶粒成長の対象セルとし、そのセルの中心を新たな起点として、上記と同様の操作を繰り返すことで結晶粒を成長させていくというものである(図6)。しかし、このアルゴリズムでは、結晶粒の成長と共に結晶学的な成長方向(デンドライト先端位置)がずれてしまうという問題があり、デンドライト先端位置の補正(dendrite tip correction)を逐次行わなければならない。このアルゴリズムは人工的な補正を加えるためCA法の「自己組織化」とは異なることから、厳密にはCA法では無い。そこで、この問題を解決する新たなアルゴリズムをGandinらは提案した。その一つがrectangle growth algorithm^{22,23)}である(図7)。このアルゴリズムは、デンドライト先端の成長距離に見合った長方形をDEの一辺に作成し、先端の成長方向[10]を維持したままDEを成長させる方法である。この

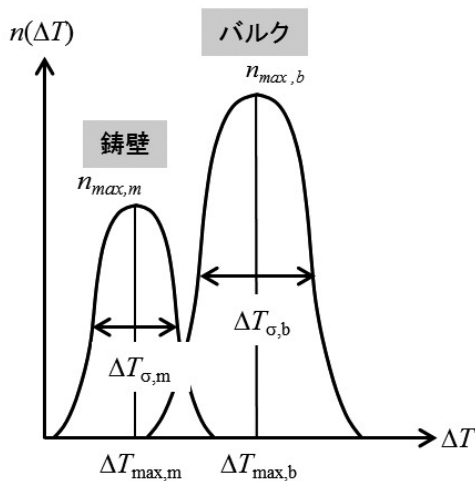


図5 核密度と過冷度の関係(ガウス分布)

アルゴリズムによって結晶学的な成長方向のずれは起こらなくなった。しかしながら、このアルゴリズムでは3次元への拡張が困難であったことから、さらに decentered square growth algorithm²⁴⁾が提案された(図8)。decentered square growth algorithmは2次元の成長アルゴリズムである。核生成させたセルAの中心から結晶学的な成長方向[10]に正方形のDEを成長させる。時間 $t+\Delta t$ におけるDEの一辺の半分のサイズ $L_A^{t+\Delta t}$ は以下になる。

$$L_A^{t+\Delta t} = \frac{1}{\sqrt{2}} \int_{t_0}^t v[\Delta T_A(\tau)] d\tau \dots\dots\dots (12)$$

ここで、 $v[\Delta T_A]$ はセルAの過冷度におけるデンドライト先端成長速度である。DEが隣接セルの中心を捕捉するまでは、正方形の中心は、セルAの中心と一致している。DEが隣接セル B_1 の中心に到達すると、点 B_1 からDEまでの距離

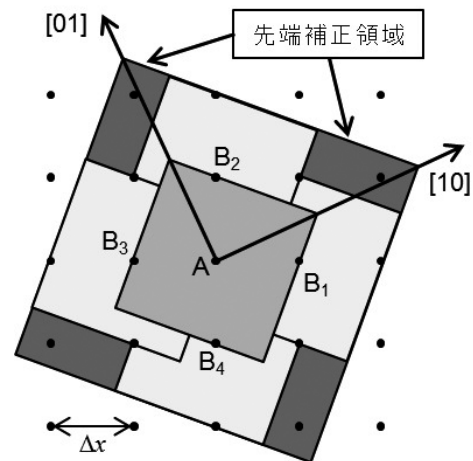


図6 2次元の結晶粒成長アルゴリズム (square growth)

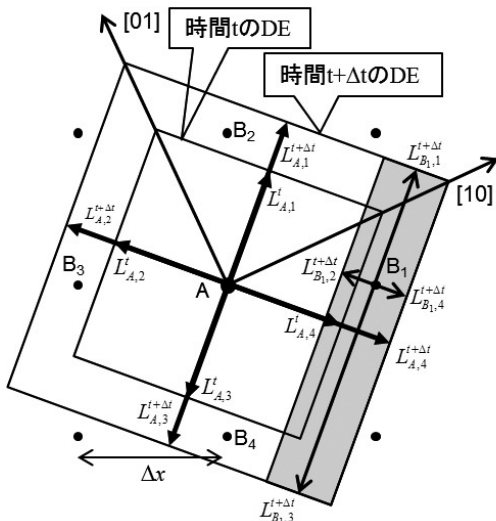


図7 2次元の結晶粒成長アルゴリズム (rectangle growth)

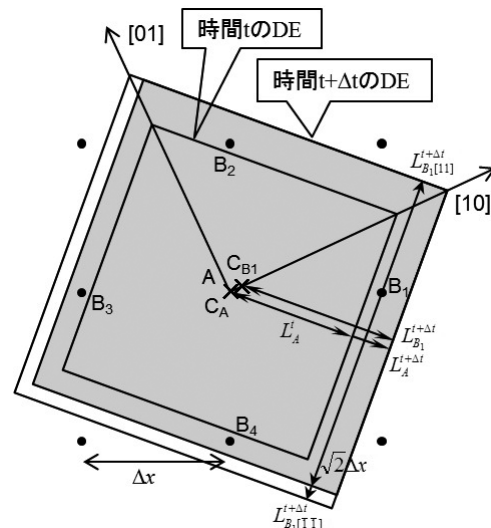


図8 2次元の結晶粒成長アルゴリズム (decentered square growth)

$L_{B_1}^{t+\Delta t}$ と $L_{B_1}^{t+\Delta t}$ を求め、セル B_1 でのDEのサイズ $L_{B_1}^{t+\Delta t}$ を算出する。このとき以下の条件を満足するように $L_{B_1}^{t+\Delta t}$ は決定される。

$$L_{B_1}^{t+\Delta t} = \frac{1}{2} \left[\text{Min}(L_{B_1}^{t+\Delta t}, \sqrt{2} \cdot \Delta x) + \text{Min}(L_{B_1}^{t+\Delta t}, \sqrt{2} \cdot \Delta x) \right] \quad (13)$$

この条件は $L_{B_1}^{t+\Delta t}$ がセルサイズ Δx の $\sqrt{2}$ 倍以下であることを示しており、このサイズより大きくなると複数の隣接セルを同時に捕捉することとなり、本来の成長とは無関係なセルまでDEの中に取り込むこととなる。上記の成長アルゴリズムにより結晶粒が成長すると、DEよりも小さな正方形で隣接セルを捕捉していくことになる。その小さな正方形は、初期のセルAの中心とは異なる中心を持つことからdecentered square growthと呼ばれる。3次元では、類似の操作によって八面体をDEの成長に用いるため、decentered octahedron growth²⁴⁾と呼ばれる(図9)。現在は2次元・3次元共に、このアルゴリズムが用いられている。

3.3 マクロスケールCA法による凝固結晶粒成長

マクロスケールCA法では、凝固伝熱シミュレーションにより得られた温度場の下で、前節で説明した核生成および結晶粒成長を計算する。CA法は、数式で記述できない現象でもセル間の相互作用がモデル化できれば比較的容易にモデル追加ができることが利点の一つである。図10は、従来の3次元マクロスケールCA法を改良し溶質濃度モデルを追加して計算したAl-Si合金の一方向凝固の結晶粒組織と濃度分布の一例である²⁶⁾。底部から柱状晶が成長し、上部に等軸晶領域が形成される結晶粒組織となっている。一方向凝固では最終凝固部に溶質が濃化する。この結果も底部から上部に向かって

溶質濃度が増加し、最終凝固部である等軸晶領域が最も濃化している。少しモデルを改良することで、従来モデルでは解析できない現象(ここでは偏析)を結晶粒組織と同時に計算可能にすることもできる。ここでは結晶粒組織の計算の一例のみを紹介したが、マクロスケールCA法は、粒選択やCETなどの結晶粒組織の評価³³⁾、偏析^{25,26)}、ポロシティ形成³⁴⁾などマクロ組織形成過程で起こる多くの現象の解析に有効なモデルとして利用されている。

3.4 メソスケールCA法

メソスケールCA法は、Nastac²⁷⁾のモデルが提案された頃から、Stefanescu, Zhuらによってモデルが改良されている^{28-30,35)}。どのモデルにおいても基本的な考え方は同じである。CA法としてのセルの条件は、固相、液相、固液界面の3つであり、固相セルと液相セルの間に必ず界面セルが入る(図11)。成長に伴い界面が移動し、界面セルの固相率が1になると界面セルは固相セルに変換され、隣接する液相セルが界面セルに変換される。界面移動の条件は、温度や濃度で決定され、各セルの温度、濃度は以下の凝固熱伝導方程式と拡散方程式によって計算される。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \nabla^2 T + \frac{L}{C_p} \frac{\partial f_s}{\partial t} \quad (14)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D_i \nabla^2 C_i + C_i(1-k) \frac{\partial f_s}{\partial t} \quad (15)$$

ここで、 f_s はセル単位での固相率、 k は平衡分配係数であり、(15)式の i は固相、液相、界面を表す。 $\partial f_s / \partial t$ は固相、液相では0となるため、単相領域での各式は単純な熱伝導方程式と溶質拡散方程式になる。界面では第2項が影響し、潜熱

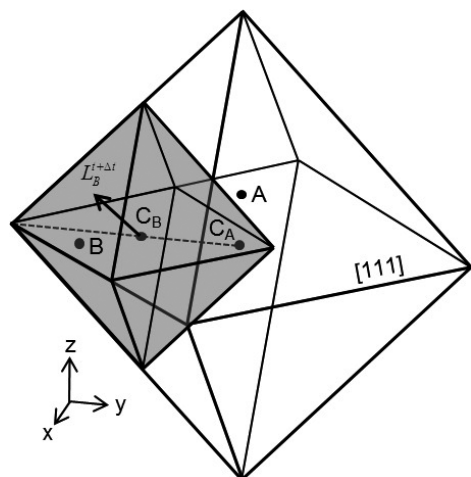


図9 3次元の結晶粒成長アルゴリズム (decentered octahedron growth)

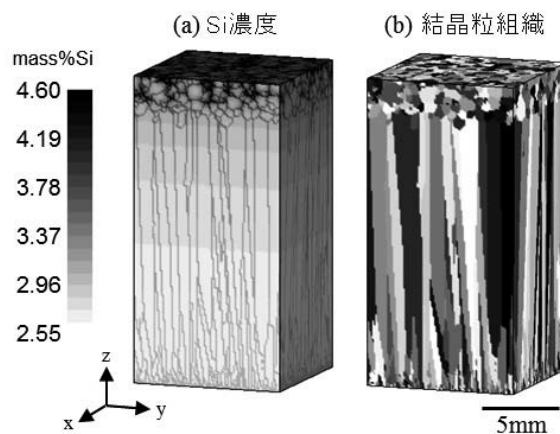


図10 マクロスケールCA法によるAl-Si合金の一方向凝固の計算例 (a) Si濃度 (b) 結晶粒組織

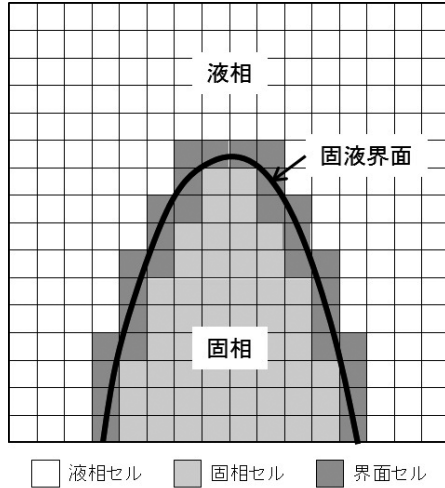


図11 メソスケールCA法で取り扱うセルの条件

および溶質分配が考慮される。界面の平衡濃度は、局所平衡を仮定しているため、平衡状態図から算出できる。デンドライト成長のモデルでは、Gibbs-Thomson効果と界面エネルギーの異方性を考慮しなければならないため、液相の平衡濃度は以下ようになる。

$$C_L = C_0 + \frac{T - T_L}{m_L} + \frac{K\Gamma(\theta)}{m_L} \quad (16)$$

ここで、 C_0 は初期組成、 T_L は液相線温度、 m_L は液相線勾配、 $\Gamma(\theta)$ は界面エネルギーの異方性を考慮したGibbs-Thomson係数、 K は界面曲率である。界面曲率を正確に計算することで複雑形状の界面を定量的に取り扱うことができる。界面曲率の求め方には、主に2つの方法がある。第1の方法は、Box-countingと呼ばれる方法²⁷⁾で、対象とする界面セルと隣接セルの固相率の平均値を計算し、以下の式を用いて界面曲率を算出する。

$$K = \frac{1}{\Delta x} \left[1 - \frac{2}{N+1} \left(f_s + \sum_{j=1}^N f_s(j) \right) \right] \quad (17)$$

ここで、 N はカウントする隣接セルの数である。第2の方法は、以下の曲率の一般式を用いる方法²⁸⁻³⁰⁾である。

$$K = \frac{f_s^*}{(1 + (f_s')^2)^{3/2}} = \left[\left(\frac{\partial f_s}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial f_s}{\partial y} \right)^2 \right]^{-\frac{3}{2}} \times \left[2 \frac{\partial f_s}{\partial x} \frac{\partial f_s}{\partial y} \frac{\partial^2 f_s}{\partial x \partial y} - \left(\frac{\partial f_s}{\partial x} \right)^2 \frac{\partial^2 f_s}{\partial y^2} - \left(\frac{\partial f_s}{\partial y} \right)^2 \frac{\partial^2 f_s}{\partial x^2} \right] \quad (18)$$

なお、3次元では2つの曲率半径を持つため、Box-countingか重量平均曲率 (weighted mean curvature) を用いる³⁵⁾。

界面エネルギーの異方性は、界面スティフネスで与えられ、Gibbs-Thomson係数にその効果を考慮すると以下のようにになる。

$$\Gamma(\theta) = \Gamma_0 (1 - 15\epsilon_4 \cos(4\theta)) \quad (19)$$

ここで、 Γ_0 は等方的な界面エネルギーでのGibbs-Thomson係数である。Gibbs-Thomson係数は、界面エネルギーに比例するため、Gibbs-Thomson係数の異方性は、界面エネルギーの異方性と等価である。

固相率変化量 Δf_s の算出には、固液界面の成長速度 V (V_x, V_y)から求める方法²⁷⁻²⁹⁾と溶質バランスから求める方法³⁰⁾がある。

$$\Delta f_s = \frac{\Delta t}{\Delta x} \left(V_x + V_y - V_x V_y \frac{\Delta t}{\Delta x} \right) \quad (20)$$

$$\Delta f_s = \frac{C_L - C}{C_L(1-k)} \quad (21)$$

熱と溶質の発展方程式と、(16) ~ (21) 式の界面セルでの条件を用いることで、メソスケールCA法によるデンドライト成長シミュレーションが可能である。

3.5 メソスケールCA法によるデンドライト成長

メソスケールCA法は、PF法と同様にデンドライト成長に有効である。前述したように、PF法との違いは、要素サイズを大きくできることである。そのため、広領域の計算を汎用のPCでも比較的短時間で実行できる。図12は2次元メソスケールCA法によるデンドライト成長シミュレーションの計算例である³⁶⁾。計算領域は0.5mm×1mmで、デンドライト成長シミュレーションとしては比較的広領域である。これは、デスクトップPCを使用して数時間程度で計算できてしまう。デンドライトの1次枝、2次枝ともに実際のデンドライトと類似した形態で成長していることから、それほど計算精度は低くない。このような広領域計算が可能であれば、介在物や晶出物の分布予測やマクロ偏析形成とデンドライト組織の関係の解明など複数のデンドライトが起因する現象の解析に効果的であると考えられる。

4 おわりに

本稿では、凝固組織形成シミュレーションに用いられているPF法とCA法のモデルの基礎と計算結果の一例を紹介した。紙面の都合上、ここではモデルの詳細までは説明できな

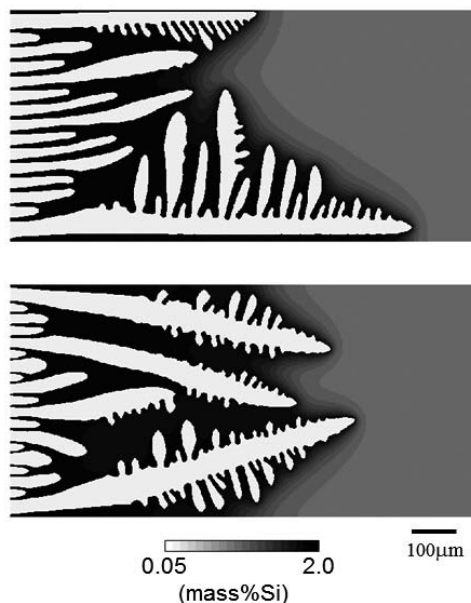


図12 メソスケールCA法によるデンドライト成長の計算例

かったが、PF法とCA法が凝固組織形成モデルとして着実に発展していることは、ご理解いただけたことと思う。詳細に興味を持たれた方は、各手法の原論文を一読することをお勧めしたい。今後、材料組織制御の1つのツールとしてPF法、CA法が広く利用され、多くの研究者が有効な利用法を見だし、PF法、CA法が更に発展していくことを期待している。

参考文献

- 1) K.Kobayashi : Physica D, 63 (1993), 410.
- 2) A.Karma and W.-J.Rappel : Phys.Rev.E, 57 (1998), 4323.
- 3) A.A.Wheeler, W.J.Boettinger and G.B.MacFadden : Phys.Rev.A, 45 (1992), 7424.
- 4) S.G.Kim, W.T.Kim and T.Suzuki : Phys.Rev.E, 60 (1999), 7186.
- 5) R.F.Almgren : SIAM J.Appl.Math., 59 (1999), 2086.
- 6) A.Karma : Phys.Rev.Lett., 87 (2001), 115701.
- 7) B.Echebarria, R.Folch, A.Karma and M.Plapp : Phys. Rev.E, 70 (2004), 061604.
- 8) M.Ohno and K.Matsuura : Phys.Rev.E, 79 (2009), 031603.
- 9) M.Ode, J.S.Lee, S.G.Kim, W.T.Kim and T.Suzuki : ISIJ Int., 40 (2000), 870.
- 10) J.Tiaden, B.Nestler, H.J.Diepers and I.Steinbach : Physica D, 115 (1998), 73.
- 11) S.G.Kim, W.T.Kim, T.Suzuki and M.Ode : J.Crystal Growth, 261 (2004), 135.
- 12) J.J.Eggleston, G.B.McFadden and P.W.Voorhees : Physica D, 150 (2001), 91.
- 13) 大出真知子, 鈴木俊夫 : 鑄造工学, 73 (2001), 335.
- 14) 高木知弘, 山中晃徳 : フェーズフィールド法, 養賢堂, (2012), 75.
- 15) M.Ode and T.Suzuki : ISIJ Int., 42 (2002), 368.
- 16) T.Takaki, T.Shimokawabe, M.Ohno and A.Yamanaka : J.Crystal Growth, 382 (2013), 21.
- 17) 梶千修 : R&D 神戸製鋼技報, 58 (2009), 35.
- 18) T.Okamoto and K.Kishitake : J.Crystal Growth, 29 (1975), 137.
- 19) 岡本平 : 日本金属学会会報, 17 (1978), 731.
- 20) 加藤恭義, 光成友孝, 築山洋 : セルオートマトン法, 森北出版株式会社, (1998), 9.
- 21) M.Rappaz and Ch.-A.Gandin : Acta Metall.Mater., 41 (1993), 345.
- 22) Ch.-A.Gandin and M.Rappaz : Acta Metall.Mater., 42 (1994), 2233.
- 23) Ch.-A.Gandin, R.J.Schaefer and M.Rappaz : Acta Mater., 44 (1996), 3339.
- 24) Ch.-A.Gandin and M.Rappaz : Acta Mater., 45 (1997), 2187.
- 25) T.Carozzani, H.Digonnet, M.Bellet and Ch.-A.Gandin : Mater.Sci.Eng., 33 (2012), 012087.
- 26) Y.Natsume and K.Ohsasa : ISIJ Int., 54 (2014), 415.
- 27) L.Nastac : Acta Mater., 47 (1999), 4253.
- 28) L.B.-Sanchez and D.M.Stefanescu : Metall.Mater.Trans. A, 34 (2003), 367.
- 29) L.B.-Sanchez and D.M.Stefanescu : Metall.Mater.Trans. A, 35 (2004), 2471.
- 30) M.F.Zhu and D.M.Stefanescu : Acta Mater., 55 (2007), 1741.
- 31) W.Wu, D.Sun, T.Dai and M.Zhu : Acta Phys.Sin., 61 (2012), 150501.
- 32) W.Kurz, B.Giovanola and R.Trivedi : Acta Metall., 34 (1986), 823.
- 33) Ch.-A.Gandin, J.-L.Desbiolles, M.Rappaz and Ph.Thevoz : Metall.Mater.Trans.A, 30 (1999), 3153.
- 34) R.C.Atwood and P.D.Lee : Acta Mater., 51 (2003), 5447.
- 35) S.Pan and M.Zhu : Acta Mater., 58 (2010), 340.
- 36) Y.Natsume : unpublished.

(2013年12月15日受付)