

## 論文の内容の要旨

論文題目 Phase-field modeling for the solidification processing  
(和訳 凝固プロセスのフェーズフィールドモデリング)

氏名 大出真知子

材料特性はその組成だけではなくマイクロ組織にも依存するため、望ましい組織を得るために様々な操作が付加される。ここで、凝固過程中に形成された組織はその後の過程で取り除くことは困難であり、凝固マイクロ組織形成過程の理解が組織制御の観点から重要な課題である。

近年コンピューター処理速度の向上により、相成長を支配する方程式を数値的に解く事が可能となった。そのため、それまで解析的に扱う事が困難であった複雑な凝固組織成長過程に対しコンピューターシミュレーションが新たな理解をもたらす事が期待されている。その中でもフェーズフィールド法は Ginzberg-Landau 方程式を基礎とした物理的な理論背景の明確なモデルとして、また低凝固速度の場合には局所平衡条件を満たし、急速凝固時には溶質捕捉現象を正しく再現できる解析手法として注目を集めている。本研究はこのフェーズフィールド法の多元系への拡張とともに、マイクロ組織形成予測への適用可能性を検討することを目的とする。具体的な事例としては、粒子/界面問題、組織粗大化過程の解析、初期凝固組織の解析を行い適用性の検討を行った。

第 1 章では、本研究の目的や関連分野での位置付けを示している。始めに凝固マイクロ組織予測手段としてのコンピュータシミュレーション有用性やその中でのフェーズフィールドモデルの位置付けを説明している。次に、フェーズフィールドモデルの歴史を概説し、1986 年の Langer による凝固問題に対する適用性の指摘から、純金属系での数値解析例の提示を契機とし、合金モデ

ル、マルチフェーズフィールドモデルへの拡張が行われた事を説明した。また、sharp interface limit と thin interface limit パラメータの差異を実用性の観点から説明し、1999年 Kim による 2元合金モデルの提出によりフェーズフィールド法が実用問題へ適用可能なツールとしてほぼ完成するに至った経緯を述べた。さらに、フェーズフィールド法を用いた凝固過程の解析例の調査を行い、現在までは理論的研究が主であり、実際問題へ適用性の検討が行われていない事を指摘した。このような状況から、本研究では現在解析が困難とされている凝固諸問題、モデルの多元系への拡張、粒子/界面問題、組織粗大化過程の解析、初期凝固組織の解析を行い、その適用性の検討を目的とすることを明確にした。

第2章では、2元合金フェーズフィールドモデルを希薄溶液条件下で多元系へ拡張した。パラメータは thin interface limit 条件下で導出した。モデルの妥当性を局所平衡状態の再現性で確認し、各濃度、曲率半径に対して Gibbs-Thomson 係数の誤差は希薄2元合金の理論値を基準として1%程度であることを示した。

導出モデルを用いて Fe-C-P 合金のマイクロ偏析過程の計算を行い、界面位置は通常使用される時間の平方根に比例する仮定よりも高固相率で停滞する事を示した。また、液相濃度比の解析では、炭素は拡散速度が比較的大きな溶質元素であり液相の完全混合を仮定した Scheil の式でも適用可能である事を示した。一方、拡散係数の小さいリンでは Clyne-Kruz の解析解のみに一致する事を示すことができた。

さらに添加されたリン濃度がデンドライト組織に与える影響を評価した。リン添加に応じてデンドライト先端成長速度の減少と半径の増加が見られた。しかし、添加量が微少の場合はリンの界面不安定化への寄与が大きく組織は微細化することを示した。

また、2元系から3元系への拡張に際して計算アルゴリズムの変更は殆ど無く、計算時間の上昇は20%程度である。この観点からもフェーズフィールド法が実用多元合金の解析に有効である事を示した。本モデルは以下に述べる解析にも適用されている。

第3章では、合金の固液界面と介在物粒子の相互作用を解析した。従来の解析手法では介在物周囲での界面変形と溶質濃化の効果をセルフ・コンシステントに決定する計算時間が問題となり、界面形状の計算が事実上不可能であった。一方、フェーズフィールド法では曲率効果や界面での溶質分配や拡散は全系に対して適用される支配方程式により陰に考慮されているため、従来の問題点から開放されている。そこで、フェーズフィールド法により界面が粒子付近での溶質濃化の

影響で徐々に変形する様子を示し、得られた界面形状を用いて粒子押し出し力を全界面エネルギーの界面変形深さに対する変化率として定義し、流体の粘性に由来する粒子捕捉力と合わせて粒子の運動を記述した。それにより、鋼中のアルミナ粒子の凝固界面による押し出し／捕捉挙動を再現し、粒子径に対する粒子捕捉の臨界速度を求めた。また、臨界速度が濃度に対して極小値を持つ事を示した。これは、溶質濃度の増加が押し出し力に対して、界面-粒子間の距離が増加、界面が全体的に変形（変形深さに対する全界面エネルギー率の増加）という相反する効果を示すためである。このようにフェーズフィールド法を用いることで、計算による界面と介在物粒子の相互作用の再現という新たな知見を得られる事を示しその実用性の高さを示した。

第4章ではフェーズフィールド法を相の粗大化現象へ適用を行った。通常、相の粗大化の問題は多体問題として取り扱いを避けるため、2体問題への簡素化、母相の平均場としての取扱い、または粒子位置の統計学的処理等が行われる。一方、フェーズフィールド法では局所平衡を駆動力とする拡散場の相互作用の直接的な取扱いが可能あり、さらに相成長を伴う過程も同様に扱う事ができる。そこで、局所平衡条件下での解析例としてオストワルド成長過程、相成長を伴う事例としてデンドライト2次枝成長過程への適用を行った。

オストワルド成長解析では溶質濃度分布の時間変化を示し、同径の粒子でも周囲の粒子分布状態に応じて成長／消失速度が異なることを示した。また、平均半径で規格化された粒子径分布の時間不変性、平均半径が時間の $1/3$ 乗に比例する事を示し（LSW理論）、固相率増加に対して粒系分布が幅広になり対称形近づく事を示した。この固相率変化に対する傾向は実験結果、解析解と一致する事を示した。

2次枝成長解析では2次枝が競争成長をしながら粗大化する過程を示した。始めにAl-Cu系で計算枝間隔と実験結果が定量的に良い一致をすることを示した。さらにFe-C系で計算を行い枝間隔見積り式の部分凝固時間指数の合金依存性を指摘した。指数に影響を及ぼす諸因子の検討を特定の物性値を恣意的に変化させる事で行い、液相の拡散係数・界面エネルギーは枝間隔のみ、液相線勾配と分配係数は枝間隔と指数の両方に影響することを示した。さらに、液相線勾配と分配係数の関数をパラメータとして部分凝固時間の材料依存性を予測する見積り式を提案した。

これらの解析を通じてフェーズフィールド法は凝固開始から凝固後期過程で支配的な粗大化現象まで含めた包括的な解析が可能な手法である事を示した。

第5章では合金系のフェーズフィールド法に対して温度場連成計算を行った。これは急速凝固

時の初期組織形成過程など温度場の影響が無視できない系に対するフェーズフィールド法の適用性を評価する事を目的とする。温度場連成に伴う計算時間の増大に対策として、各場に対して異なる要素サイズを用いるダブルメッシュ法、並列計算法などのアルゴリズムの検討を行い、実用可能な計算時間を達成した。

得られた鋼の初期凝固組織は特徴的なセル/デンドライト遷移を再現し、デンドライト1次、2次枝間隔は実験値とほぼ一致する値を示した。また、優先成長枝の先端速度がほぼ一定になるを示した。これは先端付近の温度分布の詳細な検討により固液両側の負の温度勾配が存在し、成長形態が一方自由デンドライト成長とみなせると説明する事ができた。

また、組織へ影響を及ぼす諸因子の検討として、優先成長方位と微量第3元素の影響の解析を行った。それにより、優先成長方向の鋳型面に対する傾きが大きいほど2次枝の発達が著しく、0.02mol%のリン添加により各枝間隔が10-20%減少する事を示した。フェーズフィールド法が温度場連成計算に対しても有効であり、幅広い凝固条件に対して適用可能であることを示した。

第6章では本論文の総括を述べた。

以上のように本研究では現在解析が困難とされている凝固諸問題に対してフェーズフィールド法適用の検討を行い、解析結果の定量性が高い手法である事を示した。これにより、フェーズフィールド法が凝固ミクロ組織形成過程を統合的に取り扱う手法である事を証明した。