

博 士 論 文

デンドライト凝固組織の高精度予測 に向けた大規模フェーズフィールド 計算手法に関する研究

令和元年度

京都工芸繊維大学大学院工芸科学研究科

坂 根 慎 治

目次

1. 緒言	1
1.1 研究の背景	1
1.1.1 デンドライト凝固組織	1
1.1.2 デンドライト成長のその場観察	2
1.1.3 デンドライト成長の数値計算	3
1.1.4 高性能計算手法を用いた大規模デンドライト成長計算	5
1.2 本研究の目的	6
1.3 本論文の構成	7
2. 柱状デンドライト競合成長の大規模計算	9
2.1 数値モデル	10
2.1.1 二元合金凝固の自由境界問題	10
2.1.2 二元合金凝固のための定量的フェーズフィールドモデル	12
2.1.3 定量的フェーズフィールドモデルの一方凝固問題への拡張	15
2.2 計算手法	16
2.2.1 計算領域移動法	16
2.2.2 複数 GPU 並列計算	17
2.3 計算性能評価	18
2.4 柱状デンドライト競合成長	19
2.4.1 単結晶	19
2.4.2 二結晶	36
2.4.3 多結晶	49
2.5 結言	61
3. 液相流動を伴うデンドライト凝固計算	63
3.1 数値モデル	63
3.2 計算手法	65
3.3 計算性能評価	67
3.4 強制対流下におけるデンドライト成長	67
3.4.1 単一デンドライト成長	68
3.4.2 複数デンドライト成長	78
3.5 自然対流を伴う柱状デンドライト成長	79
3.6 デンドライト樹間の透過率評価計算	90
3.7 結言	96

4. 液相流動と熱・溶質の移流拡散を考慮した凝固計算の高速化	98
4.1 数値モデル	98
4.2 計算手法	101
4.2.1 複数格子および時間増分法	101
4.2.2 複数 GPU 並列計算	103
4.3 計算性能評価	103
4.4 結言	107
5. 液相中を運動するデンドライトの凝固計算	109
5.1 単一デンドライト成長の数値モデル	109
5.2 単一デンドライト成長の計算手法	112
5.2.1 複数格子法	112
5.2.2 計算領域移動法	113
5.3 円柱落下計算による妥当性評価	113
5.4 沈降中の単一デンドライト成長	116
5.5 複数デンドライト成長の数値モデル	120
5.6 複数デンドライト成長の計算手法	125
5.6.1 Active parameter tracking 法	125
5.6.2 複数 GPU 並列計算	128
5.7 等軸晶形成過程の再現計算	128
5.8 結言	131
6. 結言	133
参考文献	135
関連学術論文	150
謝辞	152

1. 緒言

1.1 研究の背景

1.1.1 デンドライト凝固組織

世界人口の増加，有限の資源，環境保護などの制約の下，継続的な社会発展を維持することが課題となっている現代において，強度や延性，靱性の高い金属材料の開発は，自動車や飛行機といった機械製品の軽量化とそれに伴う省資源，低燃費化に繋がる重要な課題である．金属材料の強度や延性，靱性を向上させるための主な取り組みとして，希少元素の添加による材料特性向上の研究が行われている[1]．一方で，金属材料の機械的特性は，材料の成分組成だけでなくメゾスケール($0.1\ \mu\text{m}\sim 100\ \mu\text{m}$)の金属組織形態に強く依存することが知られている[2-4]．資源の乏しい日本において，組織形態の最適化は希少元素の添加によらない高性能材料開発手法として重要な意味を持つ．

金属組織は材料加工プロセスの初期工程である鑄造において形成される凝固組織として現れる．凝固組織は鑄造製品の品質や性能を直接決定するだけでなく，その後の材料加工プロセスにおける初期組織となり最終製品の金属組織形態に強く影響する．その

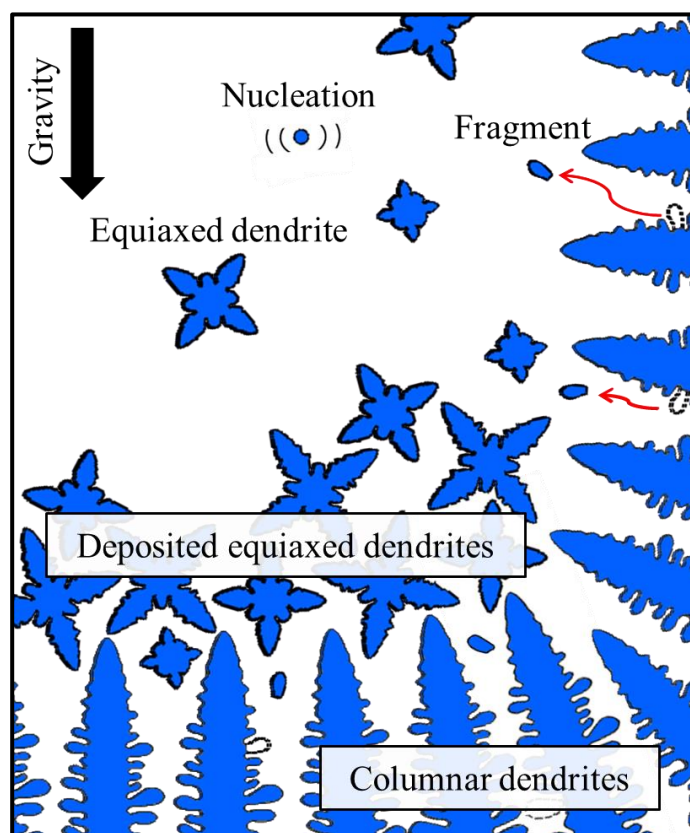


Fig.1.1 Schematic image of dendrite growth during solidification in casting.

ため、鑄造において得られる凝固組織の高精度な予測と制御は高性能材料を開発する上で非常に重要である。

鑄造工程において、鑄型に流し込まれた金属溶液は通常、鑄型壁面に接する部分から冷却される。それにより、鑄型壁面において不均一核生成が発生し、結晶成長が始まる。過冷却溶液中における典型的な凝固組織形態はデンドライト(樹枝状結晶)である[5-8]。図 1.1 にデンドライト成長過程の模式図を示す。鑄型壁面に生じた固相核は図に示すように柱状デンドライト形態を取りながら抜熱方向に一方向凝固し、柱状晶を形成する[9]。その後、過冷却溶液中に生成した固相核や柱状晶から遊離した固相片が等軸デンドライト形態へと成長しながら、浮力や流体力によって運動し、他の等軸デンドライトと衝突・結合しながら堆積することで等軸晶を形成する[10-15]。このように、凝固は固液相変態だけでなく、熱や溶質元素の移流拡散、液相の流動、固体の運動、衝突、結合とその後の粒成長などを伴うマルチフィジックス問題である。そのため、形成される凝固組織を高精度に予測するには凝固中に発生するこれらの現象が組織形態に与える影響を複合的に評価する必要がある。

1.1.2 デンドライト成長のその場観察

金属材料の溶液は、一般的に高温かつ不透明であり、デンドライトの成長過程を直接観測することは難しい。そのため、従来、デンドライト凝固組織の評価は、凝固が完了した試料の断面を研磨し腐食などの処理を行った後に観察する手法が一般的であった。しかしながら、この手法では得られた凝固組織形態から成長過程を予想するしかなく、デンドライト成長過程のダイナミクスについて得られる情報は非常に限定される。1970年代後半より、デンドライトの成長を直接観測するために、透明な有機材料である Succinonitrile (SCN) [16-20]や SCN-acetone [14-15, 21-23], $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ [10, 12-13, 24-27]を純物質や二元合金のモデル材料として用いた実験観察が行われている。これらの材料がモデル材料として選ばれた理由として、材料が透明であり通常の光学カメラを用いて直接観測することが可能である点、融点が比較的室温に近い点、立法晶金属に似た結晶成長形態が見られる点が挙げられる。また、近年においては、X線を用いたその場観察によって、不透明な金属溶液中におけるデンドライトの成長を直接観測することが可能となった[28-43]。それらの観察の中で、熱・溶質の分布が不均一になることで生じる自然対流によって柱状デンドライトの成長形態が大きく変わる様子[35]や、柱状デンドライトの破断が生じる過程[29, 31-32, 34, 36-37, 39-41]、破断した固相片が等軸デンドライトへと成長する過程[37]、液相中を等軸デンドライトが運動する様子[33, 38, 43]などが直接観測されている。しかしながら、X線を用いた観察において、観察対象は薄膜試料に限定される。そのため、実際の鑄造工程で見られるマクロなバルク材料内でのデンドライト成長を直接観測することは未だに難しい。また、温度や溶質濃度、流速の分布なども限定的な条件においてしか得られない。そのため、数値計算手法による凝固現象の再

現と、実験および数値計算の双方で得られる相補的なデータを元にした凝固メカニズムの解明が重要になる。

1.1.3 デンドライト成長の数値計算

凝固中のデンドライト成長を表現可能な数値モデルとして、主にフェーズフィールド法[44-46]やセルオートマトン法[47-58]が用いられている。フェーズフィールド法では、系の状態を表現するためにフェーズフィールドと呼ばれる新たな秩序変数 ϕ を追加し、例えば、図 1.2 に示すように固相において $\phi = +1$ 、液相において $\phi = -1$ 、固液界面において $-1 < \phi < +1$ の範囲で滑らかに変化すると定義する。この ϕ を用いて系の自由エネルギーを記述しその汎関数微分を求めることで、エネルギー最小化問題として固液界面の形態変化を取り扱う。言い換えれば、汎関数微分より求められた ϕ の時間発展方程式を解くだけで固液界面形態を明示的に追従する必要なく固液相変態を容易に表現できる。一方で、セルオートマトン法では、格子分割した計算領域中の各セルを固相セル、液相セル、界面セルのいずれかとして取り扱う。界面セルは固相セルと液相セルの間に 1 つ配置され、周囲のセルの配列や状態に基づいて固相率が 0 から 1 の範囲で変化し、0 もしくは 1 で液相セル、固相セルに切り替わる。ここで、デンドライト成長問題においては、固液界面の進展を定義する基礎式に界面曲率が含まれるため、その評価が重要になる。このとき、界面を 1 格子分の幅で表現するセルオートマトン法に対して、フェーズフィールド法では固液界面において複数の格子点から成るフェーズフィールドの連続的な分布が存在するため、 ϕ の勾配から算出される界面法線方向 $\mathbf{n} = \nabla \phi / |\nabla \phi|$ の分布を用いることでセルオートマトン法よりも高精度に界面曲率を算出することができる。そのため、固液界面における曲率評価精度の観点において、フェーズフィールド法の方が

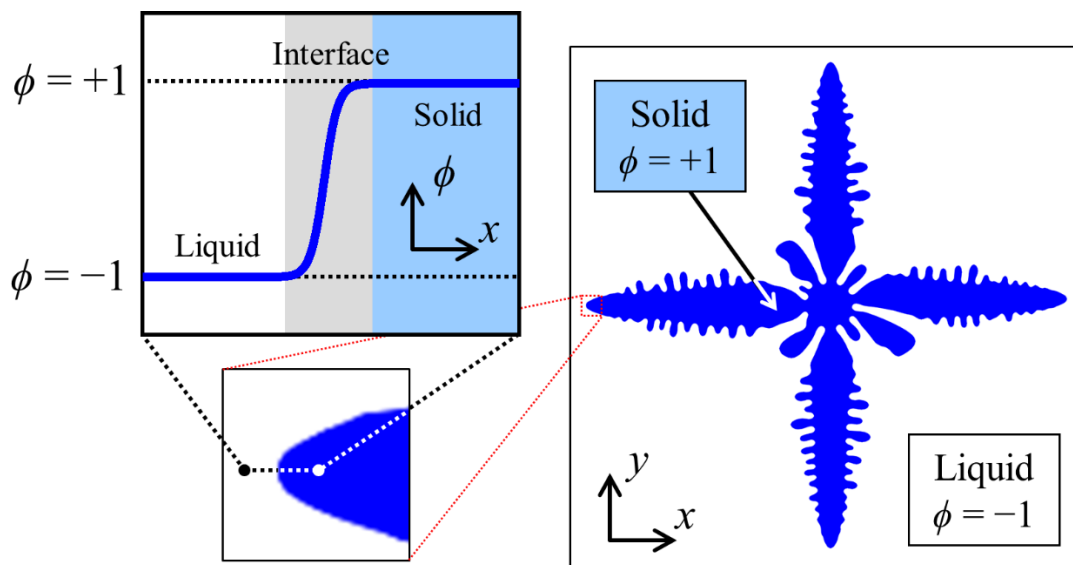


Fig.1.2 Schematic image of phase-field method.

セルオートマトン法よりも優れている。そこで、本研究では、デンドライト成長を高精度に評価可能なフェーズフィールド法に着目する。以降にフェーズフィールド法を用いたデンドライト成長計算の発展と現状の課題を述べる。

フェーズフィールド法によるデンドライト成長予測は、小林による純物質のデンドライト成長計算[44, 59]を皮切りに、計算の定量化や合金系への拡張がなされてきた。初期のフェーズフィールドデンドライト凝固モデルでは、界面幅を 0 と仮定して物性値とフェーズフィールドモデル中の係数との関連付けを行う急峻界面極限[60]が用いられた。このモデルでは、界面領域において温度や溶質濃度が分布を持つ場合、界面幅に依存して計算結果が変わるという問題を有しており、界面幅に依存しない結果を得るためには数値格子幅を 0 に近づける必要がある[61]。これに対して、Karma らは、界面領域内における温度変化を許容する薄層界面極限を用いることによって、固相と液相の熱拡散係数が等しい純物質凝固において界面幅の依存性を除去したフェーズフィールドモデルを開発した[45, 62]。このような計算結果が界面幅に依存しないモデルを定量的フェーズフィールドモデルと呼ぶ。実際の固液界面の幅が原子数個分であるのに対して、このモデルは実際の界面幅よりも大きな界面幅を用いて高精度な凝固計算を効率的に行うことを可能にした。その後、薄層界面極限は Kim らによって 2 元合金凝固問題へと拡張された[63]。しかしながら、この薄層界面極限においても、界面幅に依存して計算誤差が生じることが Almgren によって報告されている[64]。これを受けて、Karma らは、固相内拡散を 0 と仮定した条件下において、溶質拡散方程式中に界面領域における溶質拡散の流束を補正する非線形項, antitrapping 流束項を追加することによって界面幅の依存性を消す、2 元合金等温凝固モデルを考案した[65]。このモデルは、後に大野らによって任意の固相拡散係数を扱えるように拡張された[66]。また、大野らはこのモデルをさらに拡張し、多元系合金かつ固液相変態による潜熱の放出とそれに伴う温度変化を扱えるモデルを報告している[67]。これらの定量的フェーズフィールドモデルを用いて純物質のデンドライト成長計算[44, 59, 61-62, 68-69]、二元合金の等軸デンドライト成長[70-72]や柱状デンドライト成長[22, 73-82]の評価が数多く実施されている。しかしながら、それらの多くは計算対象が 2 次元問題に限定されており、3 次元問題を取り扱った計算では、単一のデンドライト成長[59, 62, 68]やデンドライト先端近傍だけを取り扱った評価[76, 78]に限定されている。これは、デンドライト先端部分をその曲率半径よりも数倍細かい数値格子で分割しないと計算の定量性が得られない問題に起因して、デンドライトスケールに対して計算に必要な数値格子点数が非常に多くなり計算コストが高くなることが原因である。

さらに、デンドライトの成長形態に強く影響する凝固中の液相流動を評価するために、フェーズフィールド凝固モデルにナビエ・ストークス法[83-85]や格子ボルツマン法[86]などの流体計算手法を連成した凝固モデルの開発が行われた。これらのモデルを用いて 2 次元デンドライト成長に強制対流[83, 86-100]や自然対流[101-103]が与える影響の評価

が行われた。液相流動を伴う問題においては、2次元と3次元でデンドライト近傍における流れ場が決定的に異なる。そのため、デンドライト形態に液相流動が与える影響の定量的な評価には3次元計算が不可欠であるが、一般的に液相流動の計算コストはフェーズフィールド計算よりも数倍以上高く、計算規模は対流を考慮しない場合よりもさらに制約される。それゆえに、液相流動を伴う3次元デンドライト成長は対流下において単一のデンドライトが成長する計算[104-107]のみに限定されていた。

また、等軸晶の形成過程において液相中に浮遊する等軸デンドライトの運動は組織形態に強く影響する。デンドライト成長中の固体の運動を評価するために、フェーズフィールド凝固モデルに流体計算と固体の運動方程式を連成した計算モデルが Do-Quang と Amberg[108]と Rojas ら[109]によってそれぞれ提案されている。これらのモデルでは、固体の運動を伴う単一の2次元デンドライト成長のみを対象としている。その後、Oi らによって複数のデンドライトの運動を取り扱えるモデルが開発された[110]。しかしながら、そのモデルにおいては、デンドライト同士が接触する場合の取り扱いは記述されておらず、浮力によって沈降した等軸デンドライト同士が衝突し結合した後の挙動を表現することはできない。高木らは Rojas ら[109]のモデルを拡張し、複数デンドライトの成長と運動、デンドライト同士が衝突した際の結合、接触した固々界面における粒成長を表現可能なモデルを構築した[111]。しかしながら、これらの計算は全て2次元計算であり、取り扱うデンドライト数も十数個程度の小規模な計算に限定されている。

1.1.4 高性能計算手法を用いた大規模デンドライト成長計算

実際の casting プロセスにおいては、凝固組織は3次元バルク内領域において無数のデンドライト結晶が周囲の粒同士で相互作用しながら競合成長することによって形成される。そのため、凝固組織形態を高精度に予測するためには、多数の3次元結晶粒の成長とその相互作用を表現可能な高性能な数値計算手法が必要となる。フェーズフィールド法を用いたデンドライト成長計算の効率化のために adaptive mesh refinement (AMR)法が用いられている[70, 77, 91, 99, 104, 107, 112-119]。AMR法は、高い空間分解能を必要とする領域に局所的に細かい計算格子を配置し、それ以外の領域には粗い計算格子を配置する計算効率化手法であり、固液界面近傍においてのみ細かい数値格子を必要とするフェーズフィールド法と非常に相性がよい。しかしながら、AMR法は、計算領域内でデンドライトが密に成長する場合など、領域内において固液界面が占める割合が多いような成長計算においては計算効率が低下するという計算性能の問題依存性を有している。また、AMR法の実装は煩雑であり、計算コードの開発に多大な労力を要する。最近、Guo と Xiong が AMR法を適用したデンドライト成長計算の複数 CPU 並列計算手法を開発し、連続冷却化における複数の3次元等軸デンドライトの成長計算を実施することに成功している[114-115]。その後、その計算手法は液相流動を伴う凝固問題に拡張され[118]、強制対流下における複数の3次元デンドライト成長計算も実施された[117, 119]。

一方で、これらの計算で用いられた計算領域サイズは AMR 法における最小の格子幅で換算して最大でも 1024^3 格子であり、取り扱われたデンドライトの個数は 10 個から 20 個程度であることから計算規模は未だに限定的である。

近年、高性能計算の分野において graphic processing unit (GPU) を汎用計算へ活用することで計算の高速化を図る General-purpose computing on graphics processing units (GPGPU) が注目されている。CPU の持つ演算コアの数が一般的に高々数個から十数個なのに対して、GPU は数千の演算コアを搭載しており高い並列処理能力を有している。この GPGPU は材料計算科学の分野においても取り入れられ、デンドライト成長計算の高速化にも活用されてきた[42, 67, 80-82, 120-126]。高木らは、この GPU を複数用いて並列計算を行う高性能計算手法を 2 元合金のフェーズフィールド一方向凝固計算に適用することで、一方向凝固時の多結晶柱状デンドライト競合成長の大規模計算を可能とし、複数 GPU 並列計算がフェーズフィールド凝固計算の高速化および大規模化に適していることを示した[120-122]。特に、東京工業大学の GPU スパコン TSUBAME2.0 を用い、768 GPU を並列して実施した 2 元合金の 3 次元大規模多結晶一方向凝固計算では、 $4096 \times 4104 \times 4096$ 格子 ($3.072 \times 3.078 \times 3.072 \text{ mm}^3$) の領域サイズを用いて、 4×10^6 計算ステップ (100 s) まで計算を行っている。これは、現時点において報告されているフェーズフィールド法によるデンドライト計算の中で最大の時空間スケールである[121]。この計算では均一な正方格子を用いた差分計算によって、大規模なフェーズフィールド計算を実現している。差分計算は GPU の多数の演算コアを用いたベクトル演算と非常に相性が良い。また、正方格子を用いた差分計算は実装がシンプルであり、さまざまな凝固問題にモデルを拡張する上で汎用性が高く適用しやすい。一方で、この大規模柱状デンドライト成長計算においても、柱状デンドライトが成長可能な距離が計算領域に制約されるため、定常成長状態におけるデンドライト同士の相互作用を評価可能な十分な引抜時間を確保できているとは言えず、更なる計算の効率化が必要である。

1.2 本研究の目的

本研究では、デンドライト凝固組織の高精度予測に向けた大規模フェーズフィールド計算手法を確立することを目的とする。大規模計算は、並列演算性能の高い graphics processing unit (GPU) を複数用いた並列計算をベースとし、各種計算効率化手法を併用することで可能とする。さらに、構築手法を用いて東京工業大学の GPU スーパーコンピュータ TSUBAME 上において大規模計算を行うことで、複数デンドライトの競合成長 (第 2 章)、液相流動下におけるデンドライトの形態変化、デンドライト樹間液相流れの透過率 (第 3 章) など、金属材料の凝固過程において重要な問題を数値計算によって初めて高精度に評価する。さらに、固液相変態、溶質・熱拡散、液相流動を含むマルチフィジックス問題に対する高性能計算法を提案する (第 4 章)。また、固体の運動、衝突、結合を伴う凝固問題の大規模計算手法を構築し、等軸晶形成過程の再現を行う (第

5 章). 次節に各章の構成を示す. なお, 本研究では二元合金を対象とした.

1.3 本論文の構成

第 2 章では, 一方向凝固過程における複数柱状デンドライトの競合成長挙動評価を可能とするために, 二元合金凝固のための定量的フェーズフィールドモデル[66]を一方向凝固問題に拡張したモデルの複数 GPU 並列計算手法を開発する. ここで, 長時間の一方向凝固を効率的に再現するためにデンドライト先端を追従して計算領域を移動させる計算効率化手法も実装した. その後, 開発したコードの強スケーリング評価および弱スケーリング評価を行う. さらに, 開発手法を用いて 3 次元バルク領域内における柱状デンドライト成長挙動の評価を行う. 具体的には, まず, 一方向凝固中の二元合金単結晶内におけるデンドライト一次枝の配向性と間隔の評価を行う. 次に, 二結晶の収束粒界において相互作用するデンドライトの 3 次元淘汰挙動の評価を行う. 最後に, 多結晶一方向凝固における淘汰挙動を評価する.

第 3 章では, 凝固において重要な液相流動を考慮したデンドライト成長の大規模フェーズフィールド計算手法を構築する. 凝固モデルとして, 二元合金凝固のための定量的フェーズフィールドモデル[66]と液相流動を表現するための格子ボルツマンモデルの連成モデル[109]を用いる. 開発した手法の並列計算性能の評価を行い, 対流下における 3 次元デンドライト成長形態の評価に必要な大規模計算に複数 GPU 並列計算手法を適用することの有用性を示す. その後, 開発手法を用いて, 強制対流が 3 次元デンドライト形態に与える影響を, 対流方向に対するデンドライトの結晶方位を変えて詳細に評価した. さらに, 重力下での合金凝固において必然的に生じる自然対流が, 3 次元単結晶一方向凝固中の柱状デンドライト成長挙動に与える影響の評価を行う. また, マクロスケールの casting 予測計算において重要なパラメータである固液共存領域における流体の透過率を高精度に予測するための手法を開発し, 多数の柱状デンドライトの透過率評価を行う.

第 4 章では, 凝固速度が速い場合や対流が強い場合において重要な固液相変態時の潜熱の放出と熱拡散を考慮可能とするために, 熱・溶質の移流拡散, 液相流動を伴うデンドライト成長のための 3 次元大規模フェーズフィールド計算手法を構築する. ここで, 特に計算コストの高い熱拡散や液相流動の時間発展を効率的に解くために, フェーズフィールド方程式と熱および溶質の時間発展方程式, 液相流動を表現するための格子ボルツマン方程式を解くのにそれぞれ異なる格子幅および時間増分を用いる複数格子および時間増分法[127]を用いる. さらに, 計算の大規模化および高速化のために, 複数の GPU を用いた並列計算を実装する. 開発した手法を用いて計算性能の評価を行い, 複数格子および時間増分法, 複数 GPU 並列計算によって, 計算の高速化および大規模化が達成できることを確認する. また, 開発手法を用いて熱溶質対流を伴う複数デンドライト成長の大規模計算を実施し, その有用性を評価する.

第 5 章では、固体の運動が凝固組織の形成過程に与える影響を評価可能とするために、液相中を運動しながら成長するデンドライトの大規模計算法を構築する。まず、長距離を沈降する単一等軸デンドライトの成長を効率的に評価可能な 2 次元計算法を開発する。開発手法において、デンドライトの成長はフェーズフィールド法を、液相の流動は格子ボルツマン法を、デンドライトの沈降は運動方程式を用いてそれぞれ表現する。ここで、沈降するデンドライトに合わせて計算領域を移動させる計算効率化手法を実装する。さらに、複数格子法と GPU 計算によって計算を高速化する。開発手法の妥当性評価のため、単一円形粒子の沈降計算を実施し、先行研究の結果と比較する。その後、開発手法を用いて重力下での二元合金等温過冷却溶液中における単一デンドライトの成長計算を行い、デンドライト一次枝の成長速度、沈降速度、デンドライトの結晶方位の時間変化をそれぞれ評価する。さらに、多数の等軸デンドライトが成長しながら沈降し堆積して等軸晶を形成する過程の数値解析による評価を可能とするために、液相流動および固体の運動、衝突、結合を伴う複数デンドライト成長のためのフェーズフィールド凝固モデルの複数 GPU 並列計算法を開発する。開発手法の計算性能を評価したのち、多数のデンドライトが計算領域上端から降り注ぎながら堆積して等軸晶を形成するシャワーリング計算を行い、得られた等軸晶形態から実装した計算モデルにおけるデンドライト同士の衝突・結合モデルの妥当性を検証する。

第 6 章では本論文全体を統括し得られた成果をまとめる。

2. 柱状デンドライト競合成長の大規模計算

鑄造において、凝固は一般的に鑄型壁面に生じたチル晶から進展し、粒の淘汰を伴いながら柱状晶が形成される[9]。この時の粒の競合成長モデルとして、図 2.1 に示すように温度勾配方向に沿って成長する(favorably oriented : FO)粒は、温度勾配方向から傾いた方向に成長する(unfavorably oriented : UO)粒の成長を遮って成長し続けることが出来るという Walton と Chalmers (WC)の提唱したモデル[128]が広く受け入れられている[129-131]。しかしながら、近年、ニッケル基超合金の二結晶一方向凝固において、WC モデルに反して収束粒界で UO 粒が FO 粒を淘汰する普通ではない淘汰現象が報告されている[132-134]。この淘汰現象のメカニズムを解明するため、二元合金の二結晶一方向凝固の2次元フェーズフィールド計算が実施され[79-81, 135]、FO と UO デンドライト一次枝先端近傍の溶質拡散層の相互作用によってこの現象が引き起こされることが明らかにされた[80]。一方で、3次元系においては、FO と UO デンドライトの相互作用は必ずしも face-to-face の正面衝突ではなく、収束粒界や発散粒界における FO と UO デンドライトの成長方向が同一平面上にないねじれの場合の相互作用も起こり得る。先に言及した普通ではない淘汰現象は 3 次元二結晶競合成長においても観察されており[136-138]、3次元粒淘汰挙動を明らかにすることは、冶金学への応用やタービンブレードなどの一方向凝固製品の製造技術向上[139-141]にあたって重要な課題である。

加えて、一方向凝固中の各粒内のデンドライト/セル凝固組織の一次枝配列は、固液共存領域におけるミクロ偏析や透過率を決定する重要な因子である[8]。一方向凝固実験における柱状粒の成長方向に対して垂直な凝固組織断面の観察では、正方形配列、正六角形配列、ランダム配列などの様々な一次枝配列が確認されている[23, 142-157]。この内、凝固組織がセル構造の場合においては、六角形配列が多く報告されている[143, 148-149, 151, 153, 156]。正六角形配列は2次元平面上に同一半径の円柱を最密配置した場合

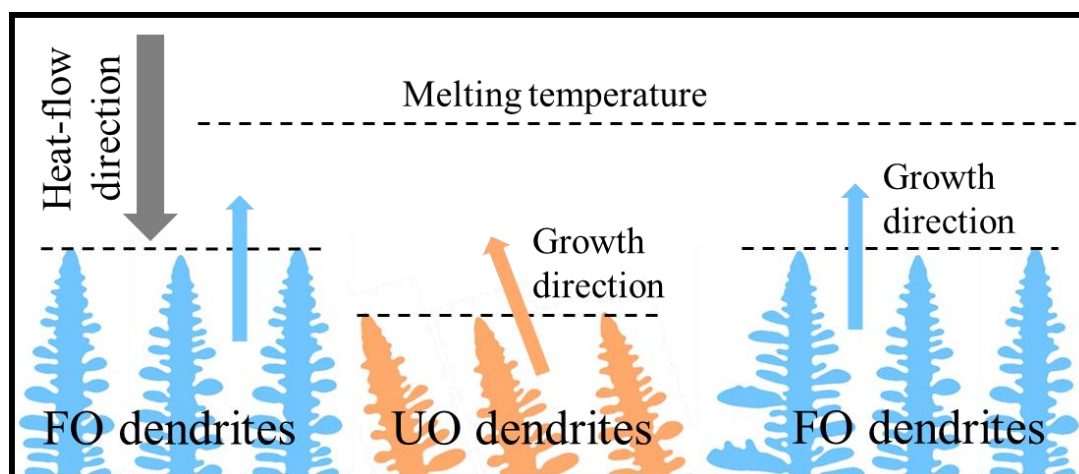


Fig.2.1 Schematic image of dendrite competitive growth.

に得られる配列であり，セル状組織の成長方向に対する垂直断面はほぼ円形であることから，円柱状セル組織が六角形配列を取ることは直感的に理解できる．また，形成された六角形配列が粒内にランダムな方位に配置されることも報告されている[148-149]．一方，デンドライト構造については，四角形[142, 158]，六角形[142, 144, 154, 159]，ランダム配列[143]など様々な配列が報告されており，デンドライト構造において支配的な配列がどれかについて決定的な報告は得られていない．

そこで，本章では，一方向凝固過程における複数柱状デンドライト競合成長の3次元評価を数値計算的に可能とするため，希薄二元合金凝固のための定量的フェーズフィールドモデル[66]を一方向凝固問題に拡張したモデルの大規模3次元計算手法を開発する．また，開発手法を用いて，単結晶，二結晶，多結晶の柱状デンドライト競合成長計算を実施し，単結晶内におけるデンドライト一次枝の配向性やデンドライト粒の3次元淘汰挙動を明らかにする．

2.1 数値モデル

2.1.1 二元合金凝固の自由境界問題

本研究では，希薄二元合金凝固に着目する．溶質が希薄な場合，液相線と固相線は線形であるという仮定が成立するとして，図 2.2 に示す状態図と近似可能な合金を計算対象とする．このとき，液相線の勾配を m ，分配係数を k とする．界面において局所的に平衡状態が成立すると仮定した時，界面の固相側の溶質濃度 C_s^* と液相側濃度 C_l^* の関係は $C_s^* = kC_l^*$ となる．このとき，界面の温度 T は式(2.1)に示す Gibbs-Thomson 関係式で表される[66]．

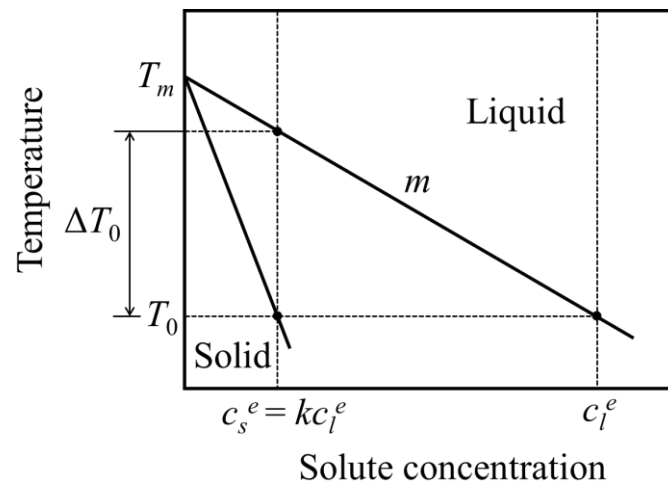


Fig.2.2 Phase diagram of dilute binary alloy.

$$T = T_m - |m|C_l^* - \Gamma\tilde{\kappa} - V_n / \mu \quad (2.1)$$

ここで、 T_m は溶媒の融点を示している。 Γ はGibbs-Thomson係数であり、 $\Gamma = \gamma T_m / \Delta H$ で与えられる。ここで、 γ は界面エネルギー、 ΔH は単位体積当たりの潜熱である。 $\tilde{\kappa}$ は界面曲率、 V_n は界面の平均移動速度、 μ はカイネティック係数である。ここで、温度 T_0 における等温凝固を考えると、式(2.1)は次のように書き換えられる。

$$C_l^* / C_l^e = 1 - (1-k)d_0\tilde{\kappa} - (1-k)\tilde{\beta}V_n \quad (2.2)$$

ここで、 C_l^e と C_s^e はそれぞれ温度 T_0 における液相および固相の平衡溶質濃度であり、 $C_l^e = (T_m - T_0)/|m|$ である。また、 d_0 は毛管長さであり、式(2.3)で定義される。

$$d_0 = \Gamma / \Delta T_0 \quad (2.3)$$

ここで、 $\Delta T_0 = |m|(1-k)C_l^e$ は凝固温度範囲である。また、式(2)中の $\tilde{\beta}$ は $\tilde{\beta} = 1/(\mu\Delta T_0)$ と定義する。固相および液相のバルク部分における溶質濃度は式(2.4)に示す拡散方程式に従う。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_i \nabla^2 C \quad (2.4)$$

式(2.4)中の D_i は溶質の拡散係数を表しており、添え字 i は $i = l$ であれば液相、 $i = s$ であれば固相を示す。さらに、界面領域において溶質濃度 C は次の質量保存則を満足する必要がある。

$$C_l^* (1-k)V_n = D_s \partial_n C|^- - D_l \partial_n C|^+ \quad (2.5)$$

ここで、 $\partial_n C|^+$ と $\partial_n C|^-$ はそれぞれ界面の固相側および液相側における溶質濃度の界面法線方向微分である。ここから、式を簡潔に表すため、溶質濃度 C の無次元化を行う。無次元溶質濃度 u は次式で定義する。

$$u = \frac{C/j_{\pm} - C_l^e}{C_l^e(1-k)} \quad (2.6)$$

このとき、液相において $j_+ = 1$ 、液相において $j_- = k$ とする。無次元溶質濃度 u の導入により、式(2.2)と式(2.4)、式(2.5)は次のように書き換えられる。

$$u^* = -d_0 \tilde{\kappa} - \tilde{\beta} V_n \quad (2.7)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D_l \nabla^2 u \quad (2.8)$$

$$\left[1 + (1-k)u^* \right] V_n = k D_s \left. \frac{\partial u}{\partial n} \right|^- - D_l \left. \frac{\partial u}{\partial n} \right|^+ \quad (2.9)$$

なお、 u^* は界面における無次元溶質濃度を表す。以上の式(2.7)、式(2.8)、式(2.9)が、界面の移動速度および、溶質濃度 C の時間発展を決定する支配方程式である。

2.1.2 二元合金凝固のための定量的フェーズフィールドモデル

次に、第2章1節1項で導出した自由境界値問題を表現可能なフェーズフィールドモデルを示す。ここで、固相および液相を表現するために、フェーズフィールド変数 p を導入し、 $p=0$ の領域を液相、 $p=1$ を固相と定義する。 p の値は、界面領域において0から1の間を連続かつ滑らかに変化する。フェーズフィールド変数 p の導入により、系の Ginzburg-Landau 型自由エネルギー関数は式(2.10)で与えられる。

$$F = \int_V \left\{ \left(\frac{\tilde{\sigma}^2}{2} \right) \cdot (\nabla p)^2 + \tilde{\omega} \tilde{f}(p) + \tilde{g}(p) f_s + [1 - \tilde{g}(p)] f_l \right\} dV \quad (2.10)$$

ここで、 $\tilde{\sigma}$ は勾配エネルギー係数、 $\tilde{f}(p)$ はダブルウェル型のポテンシャル関数、 $\tilde{\omega}$ はポテンシャル障壁である。また、 f_s および f_l はそれぞれ固相と液相の自由エネルギー密度である。補間関数 $\tilde{g}(p)$ は単調増加関数であり、 $\tilde{g}(0)=0$ 、 $\tilde{g}(1)=1$ を満足する。ここで、固相の溶質濃度場 C_s と液相の溶質濃度場 C_l を新たに導入する。本モデルでは、KKS モデル[63]に基づいて界面は固相と液相の混合領域であると定義し、固液界面における溶質濃度 C は混合則 $C = pC_s + (1-p)C_l$ に従うとする。 C_s と C_l は互いに依存する変数であり、その関係は平衡化学ポテンシャル状態を表す関係式 $\partial f / \partial C_l = \partial f / \partial C_s = \text{const.}$ によって決定される[63]。本研究では、対象を希薄二元合金とすることによって $C_s = kC_l$ の関係が成立すると仮定する。フェーズフィールド変数 p の時間発展方程式は、非保存型 Allen-Cahn 方程式 $\partial p / \partial t = -\tilde{M} \delta F / \delta p$ によって次式で与えられる[160]。

$$\tilde{M}^{-1} \frac{\partial p}{\partial t} = \tilde{\sigma}^2 \nabla^2 p - \tilde{\omega} \tilde{f}' - \tilde{g}' [f_s(C_s) - f_l(C_l) - (C_s - C_l) \mu_c] \quad (2.11)$$

式(2.11)中の $\tilde{M}$ はフェーズフィールドモビリティである。また、 $\tilde{f}'$ と $\tilde{g}'$ はそれぞれ $\tilde{f}$ と $\tilde{g}$ のフェーズフィールド変数 p に関する 1 次導関数である。溶質濃度場 C の時間発展方程式は、フェーズフィールド変数 p の導入により式(2.12)で表される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla D(p) \cdot \{p \nabla C_s + [1-p] \nabla C_l\} \quad (2.12)$$

ここで、 $D(p)$ はフェーズフィールド変数 p に依存した拡散係数であり、 $D(1) = D_s$ 、 $D(0) = D_l$ を満たす。次に、式の整理のため、新たにフェーズフィールド変数 $\phi = 2p - 1$ を導入する。このとき、固相および液相はそれぞれ $\phi = +1$ および $\phi = -1$ で表される。さらに、無次元溶質濃度 u を次のように定義する。

$$u = \frac{C_l - C_l^e}{C_l^e - C_s^e} \quad (2.13)$$

この形式は、式(2.6)の急峻界面における無次元化と同様である。希薄溶液を仮定すると、式(2.11)の右辺第 3 項は次のように近似することができる[63]。

$$\begin{aligned} f_s(C_s) - f_l(C_l) - (C_s - C_l) \mu_c &\approx -\frac{RT_0}{v_m} [C_l^e - C_s^e - (C_l - C_s)] \\ &\approx -\frac{RT_m}{v_m} [C_l^e - C_s^e - (C_l - C_s)] \end{aligned} \quad (2.14)$$

ここで、 R は気体定数であり、 v_m はモル体積である。この近似において、 $T_0 = T_m - mC_l^e$ の右辺第 2 項は、希薄溶液の場合、無視できるほどに小さい値を取るため無視できる。式(2.11)と式(2.12)はフェーズフィールド変数 ϕ と無次元溶質濃度 u を用いることで式(2.15)と式(2.16)に書き換えられる。

$$M^{-1} \frac{\partial \phi}{\partial t} = \sigma^2 \nabla^2 \phi - \omega 2 \tilde{f}' - \tilde{g}' \lambda u \quad (2.15)$$

$$\frac{[1+k-(1-k)\phi]}{2} \frac{\partial u}{\partial t} = \nabla [D_l q(\phi) \nabla u - \mathbf{J}_{AT}] + \frac{1}{2} [1+(1-k)u] \frac{\partial \phi}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{J} \quad (2.16)$$

ここで, $M = 4\tilde{M}$, $\sigma = \tilde{\sigma}/2$, $\omega = \tilde{\omega}/4$, $\lambda = RT_m(1-k)(C_l^e - C_s^e)/(2v_m)$ である. $q(\phi)$ は式(2.17)で与えられる.

$$q(\phi) = \frac{D(\phi)}{D_l} \cdot \frac{[1+k-(1-k)\phi]}{2} \quad (2.17)$$

このとき, $q(\phi)$ は $q(+1) = kD_s/D_l$, $q(-1) = 1$ である. さらに, 式(2.16)中に, 拡散界面における溶質の拡散流束を補正し界面幅に依存しない計算結果を得るための antitrapping 流束項 $\mathbf{J}_{AT}$ を追加する. Antitrapping 流束項は式(2.18)で与えられる[66].

$$\mathbf{J}_{AT} = -a(\phi) \frac{\sigma}{\sqrt{\omega}} [1+(1-k)u] \cdot \frac{\partial \phi}{\partial t} \cdot \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \quad (2.18)$$

ここで $a(\phi)$ は補間関数であり, $a(\phi) = (1-kD_s/D_l)/(2\sqrt{2})$ である. また, デンドライトの高次枝を表現するためにノイズ項 $\nabla \cdot \mathbf{J}$ を式(2.16)中に導入している[161]. 式の整理のため, $\tau = (M\omega)^{-1}$, $W^2 = \sigma^2 \omega^{-1}$, $\lambda^* = (15/8)\lambda/\omega$, $f' = 2\tilde{f}'$, $g' = (8/15)\tilde{g}'$ とおくと, 式(2.15)と式(2.16)は次のように書き換えられる.

$$\tau \frac{\partial \phi}{\partial t} = W^2 \nabla^2 \phi - f' - \lambda^* g' u \quad (2.19)$$

$$\begin{aligned} \frac{[1+k-(1-k)h(\phi)]}{2} \frac{\partial u}{\partial t} = & \nabla \left(D_l q(\phi) \nabla u + a(\phi) W [1+(1-k)u] \cdot \frac{\partial \phi}{\partial t} \cdot \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \right) \\ & + \frac{1}{2} [1+(1-k)u] \frac{\partial h(\phi)}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{J} \end{aligned} \quad (2.20)$$

ここで, f' と g' はそれぞれ $f' = -\phi + \phi^3$ および $g' = (1-\phi^2)^2$ と与える. また, $h(\phi) = \phi$ と与える. 界面エネルギー γ は次式のように関連付けられる[46].

$$\gamma = \frac{\tilde{\sigma}\sqrt{\tilde{\omega}}}{3\sqrt{2}} = IW\omega \quad (2.21)$$

ここで, $I=2\sqrt{2}/3$ である. このとき, 熱力学的駆動力の係数 λ^* は, 界面エネルギー γ と希薄二元合金に関する van't Hoff の関係式より次のように書き直せる[66].

$$\lambda^* = \frac{15}{8} \frac{RT_m}{2v_m\omega} (1-k)(C_l^e - C_s^e) = \frac{15}{8} \frac{m\Delta H}{2T_m\omega} (C_l^e - C_s^e) = \frac{15}{8} \frac{\Delta T_0 \Delta H I W}{2T_m\gamma} = \frac{15}{16} \frac{IW}{d_0} = a_1 \frac{W}{d_0} \quad (2.22)$$

ここで, $a_1 = 5\sqrt{2}/8$ である. 式(2.19)に関して界面異方性を導入すると式(2.23)へと書き直すことが出来る.

$$\tau \frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla [W^2 \nabla \phi] + \sum_{r=x,y,z} \frac{\partial}{\partial r} \left[W \frac{\partial W}{\partial (\partial \phi / \partial r)} |\nabla \phi|^2 \right] - f' - \lambda^* g'u \quad (2.23)$$

このとき, フェーズフィールド緩和時間 τ は $\tau = \tau_0 a_s^2$ で表される. なお, $\tau_0 = a_2 \lambda^* W_0^2 / D_l$ であり, $a_2 = 0.6267$ である. また, フェーズフィールド界面幅 W は $W = W_0 a_s$ で表される. a_s は $\langle 100 \rangle$ 方位をもつ結晶の界面異方性を表現するための関数であり, 次式で表される.

$$a_s(\tilde{\nabla} \phi) = (1 - 3\varepsilon_4) \left[1 + \frac{4\varepsilon_4}{1 - 3\varepsilon_4} \frac{\left(\frac{\partial \phi}{\partial \tilde{x}} \right)^4 + \left(\frac{\partial \phi}{\partial \tilde{y}} \right)^4 + \left(\frac{\partial \phi}{\partial \tilde{z}} \right)^4}{|\tilde{\nabla} \phi|^4} \right] \quad (2.24)$$

ここで, ε_4 は異方性の強度を表す変数, $(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z})$ は結晶の持つ $\langle 100 \rangle$ 方位と一致する材料座標系である. 材料座標系 $(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z})$ に関する ϕ の空間微分 $\tilde{\nabla} \phi$ は, $\nabla \phi$ を座標変換することによって $\tilde{\nabla} \phi = \mathbf{R}_x^T(\psi) \mathbf{R}_y^T(\theta) \mathbf{R}_z^T(\varphi) \nabla \phi$ と表される. ただし, 原点座標系 (x, y, z) と $(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z})$ とのなす角度は x - y - z 系オイラー角を用いて (φ, θ, ψ) と定義する. ここで, $\mathbf{R}_i(\alpha)$ は i 軸を中心に反時計回り方向へ α 回転させる回転行列である.

2.1.3 定量的フェーズフィールドモデルの一方向凝固問題への拡張

第2章1節2項に示した等温下における二元合金凝固のためのフェーズフィールドモデル[66]を一方向凝固問題に拡張する. 一方向凝固中の計算領域内の温度場は, frozen temperature approximation の導入により次式で与えられる[74].

$$T = T_0 + G(z - V_p t) \quad (2.25)$$

ここで、 G は z 方向の温度勾配、 V_p は z 方向の引抜速度である。また、 T_0 は二元合金の初期溶質濃度 C_∞ が $C_\infty = k|m|(T_m - T_0)$ を満たす基準温度である。式(2.25)の温度場 T を導入すると、式(2.23)は次のように書き換えられる。

$$\tau[1 - (1 - k)u'] \frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla [W^2 \nabla \phi] + \sum_{r=x,y,z} \frac{\partial}{\partial r} \left[W \frac{\partial W}{\partial (\partial \phi / \partial r)} |\nabla \phi|^2 \right] - f' - \lambda^* g'(u + u') \quad (2.26)$$

式(2.26)中の左辺第1項と右辺第6項に加えられた u' は frozen temperature approximation の導入により追加された項であり、式(2.27)で与えられる。

$$u' = \frac{z - V_p t}{l_T} \quad (2.27)$$

ここで、熱拡散長 l_T は $l_T = |m|(1 - k) C_\infty / (Gk)$ と定義される。

式(2.20)と式(2.26)を数値解析的に解くために、有限差分法を用いて時間及び空間に関する離散化を行う。両式とも時間については1次精度の前進差分を用いる。また、式(2.20)と式(2.26)中のラプラシアンはそれぞれ2次精度中心差分法と最近接および第2近接格子点を用いた離散化手法[120]を適用する。

2.2 計算手法

2.2.1 計算領域移動法

一方向凝固中のデンドライト一次枝先端近傍を効率的に評価するため、本研究では温度勾配方向に沿って一方向に成長するデンドライトの一次枝先端を追従するように計算領域を移動させる[66, 74, 80]。図2.3に計算領域を移動させる手順の概要を示す。なお、図中では簡単のため2次元の図を用いている。図2.3に示すように、一定時間ごとに底面からのデンドライト先端位置 $L = L_z + \Delta L$ を測定し、 ΔL の値が Δx 以上の場合、各数値格子点上の変数 ϕ , u の値を1格子下の格子点に代入する。この処理を ΔL が Δx より小さくなるまで反復することによって、デンドライト先端を追従した計算領域の移動を表現する。なお、図2.3に示すように、上端の境界領域には $\phi = -1$, $u = (C_\infty - C_l^e) / (C_l^e - C_s^e)$ を代入する。

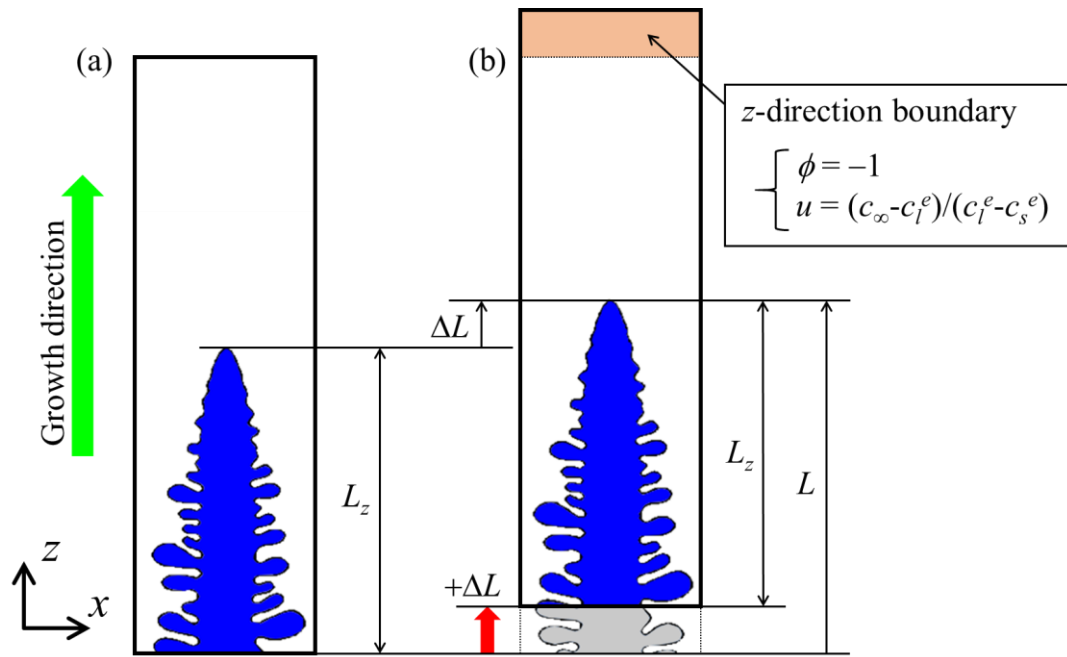


Fig.2.3 Schematics of moving frame algorithm for directional solidification.

2.2.2 複数 GPU 並列計算

本章の計算には、東京工業大学のスーパーコンピュータ TSUBAME2.5 を用いる。TSUBAME2.5 は NVIDIA 社の GPU, Tesla K20X を 3 基と Intel 社の CPU, Xeon X567 を 2 基搭載した計算ノード 1408 基から構成される GPU メインのスーパーコンピュータである。計算に用いるコードは、CPU 計算部分を C/C++言語、GPU 計算部分を compute unified device architecture (CUDA)言語を用いて記述した。また、計算ノード間の通信は message passing interface (MPI)を用いて記述した。図 2.4 に複数台の GPU を用いた並列計算における全計算領域の分割、および分割領域間での境界部分のデータの共有に関する概略図を示す。全計算領域は、 y 方向および z 方向の 2 方向に分割し、分割した領域それぞれに GPU を 1 基ずつ割り当てる。計算領域の分割には一般的に 1 次元分割、2 次元分割、3 次元分割のいずれかが用いられる。基本的に、高次の分割の方が計算領域の格子点数、すなわち計算量に対する境界データの通信量の比率が小さくなり、通信によるオーバーヘッドが小さくなる。ただし、GPU の演算性能は一般的に CPU に比べて数倍から数十倍程度高いため、3 次元複数 GPU 並列計算において必要となる並列数は、CPU を並列して実施した 3 次元計算において必要とされる並列数よりも少なくなると予想される。領域の分割数が数百以下の場合、演算量に対する分割領域境界のデータ通信量の比率は 2 次元分割の場合と 3 次元分割の場合で大きく変わらないため、本研究では実装にかかる工数が少ない 2 次元分割を採用した。分割領域境界におけるデータの共有手順は以下の通りである。

1. 各 GPU は境界にある格子点上の ϕ と $u, d\phi/dt, \mathbf{J}$ の値を GPU から CPU に転送する.
2. CPU に転送されたデータは, 隣接する領域を受け持つプロセス間で MPI 通信によって交換する.
3. 隣接領域から受け取ったデータを CPU から GPU に転送する.

以上の手順を, 各計算ステップの開始時に y 方向および z 方向に対して行う.

2.3 計算性能評価

開発した計算手法の強スケーリング評価および弱スケーリング評価を行う. なお, 浮動小数点の計算には単精度を用いた. 強スケーリング評価は, 全計算領域について 512^3 格子お

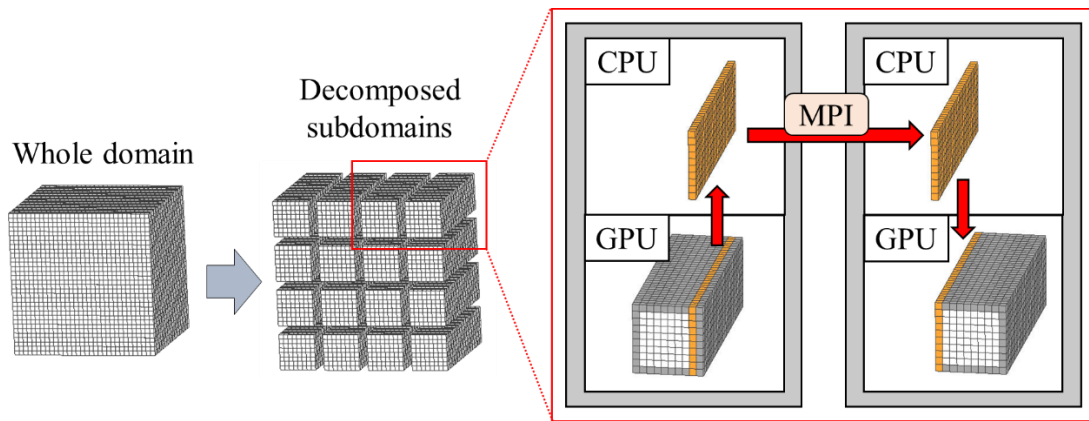


Fig.2.4 Domain decomposition and boundary data exchange between distributed GPUs.

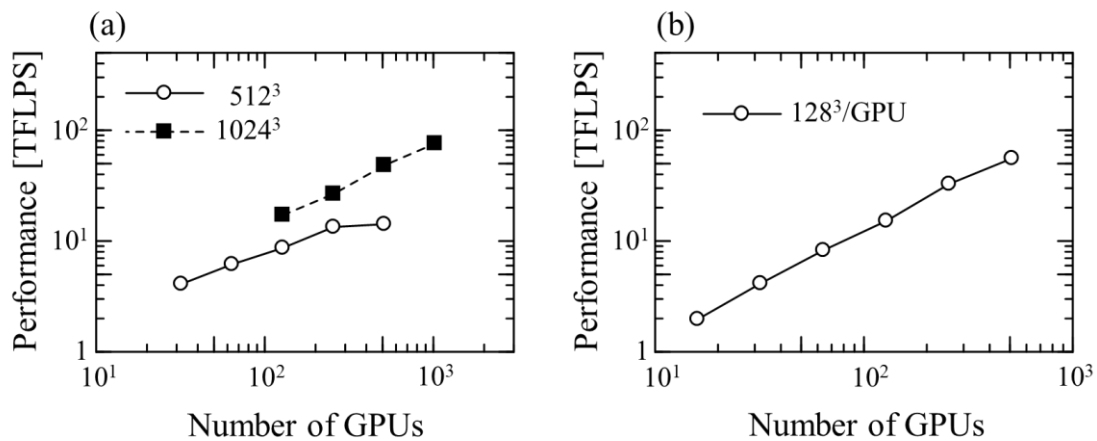


Fig.2.5 Scalability evaluation results in (a) strong and (b) weak tests of the multi-GPU parallel computational code for 3D phase-field model. Strong scaling tests are performed for the cell numbers of 512^3 and $1,024^3$. Weak scaling tests are performed using the cell numbers of 128^3 per GPU.

よび 1024^3 格子を用いて実施した。測定結果を図 2.5(a)に示す。図中において、計算性能は 1 秒あたりの浮動小数点演算回数(floating-point operations per second : FLOPS)を用いて評価する。図に示すように、 512^3 格子および $1,024^3$ 格子の両計算において、計算性能は使用する GPU 数に比例して線形に増大したが、 512^3 格子の計算では GPU 数が 256 基を超える場合において計算性能が頭打ちになる様子が見られた。この結果より、各格子数の計算において GPU 数と計算性能が線形関係を保っている範囲においては、GPU 数の増加によって効率よく計算高速化を達成できることが確認できた。さらに、GPU 数が同じ場合、 $1,024^3$ 格子の計算の方が 512^3 格子の計算よりも計算性能が高いことが確認できた。これは先行研究[120]と同様の傾向である。弱スケーリング評価は、各 GPU に 128^3 格子を割り当てて実施した。図 2.5(b)に示すように、測定した 16 GPU から 512 GPU の範囲において、GPU 数の増加に伴って線形に計算性能が増加する様子が確認できた。これにより、GPU 数を増やすことで良好に計算規模を拡張可能であることを示すことができた。

2.4 柱状デンドライト競合成長

2.4.1 単結晶

(1) 計算条件

開発手法を用いて、単結晶の一方向凝固計算を実施する。このとき、引拔速度については $V_p = 100 \mu\text{m/s}$ と固定し、6 種類の温度勾配 $G = 5, 10, 20, 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ について計算を行う。図 2.6 に計算条件および初期条件を示す。計算領域は、 $G = 10, 20, 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ の計算には 1024^3 格子を用い、 $G = 5 \text{ K/mm}$ の計算にのみ $1,536 \times 1,536 \times 1,024$ 格子を用いる。格子幅は $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 0.75 \mu\text{m}$ とする。計算領域の ϕ と u の境界条件について、 x 方向と y 方向には周期境界条件、 z 方向には零ノイマン条件を適用した。計算開始時、計算領域は Al-3wt%Cu の溶液に満たされていると設定する。このとき、半径 $3\Delta x$ の固相核を一つ、計算領域底面中央に配置する。配置した固相核の結晶方位 $\langle 100 \rangle$ は xyz 直交座標系の軸方向と一致させる。材料物性および計算パラメータの一覧を表 2.1

Table 2.1 Material properties of Al-3 wt%Cu alloy.

Parameter	Variable	Value	Reference
Melting temperature (K)	T_m	933.3	[162]
Slope of liquidus line (K/at. frac.)	m	-620	[163]
Diffusivity in liquid (m^2/s)	D_l	3.0×10^{-9}	[164]
Diffusivity in solid (m^2/s)	D_s	3.0×10^{-13}	[164]
Partition coefficient (-)	k	0.14	[164]
Gibbs-Thomson constant (Km)	Γ	0.24×10^{-6}	[165]
Anisotropic strength (-)	ε_4	0.02	

に示す．初期条件として，計算領域底面の無次元過飽和度を $u = -0.3$ と設定する．これは温度 $T = 922.39$ K に対応する．計算は異なる G ごとにそれぞれ 1×10^7 steps ($t = 267.9$ s)まで実施する．これは引抜距離 26.9 mm に対応する．このような計算領域を超える柱状デンドライトの成長を第2章2節1項に示す計算領域移動法を用いて表現する．ここでは，デンドライトの先端位置を $G = 5, 10, 20$ K/mm において $512\Delta z$ ， $G = 50, 100, 200$ K/mm において $612\Delta z$ の高さ以下に保つように計算領域を z 方向に移動させる．なお， 1×10^6 th step 以降は， $\Delta z/(V_p \Delta t)$ の周期で計算領域を 1 格子分 z 方向へ移動させる．計算には，東京工業大学の GPU スーパーコンピュータ TSUBAME2.5 を用いた．ここで， $G = 10, 20, 50, 100, 200$ K/mm の計算には 256 GPU を， $G = 5$ K/mm の計算には 512 GPU をそれぞれ用いた．計算には約 1 週間の計算実行時間を要した．

(2) 形態変化

図 2.7 と図 2.8 に各時刻における固液界面形態を $\phi = 0$ の等高面としてそれぞれ俯瞰図および上面図で示す． $G = 5$ K/mm の計算において，図 2.7(a)および図 2.8(a)に示すように $\langle 100 \rangle$ 方向に優先的に成長する典型的な立方晶のデンドライト凝固組織が観察された．その後，図 2.8(b)に示すように，計算領域中央から x 方向および y 方向に一直線にデンドライト一次枝が配向する様子が確認できた．また，図 2.8(a)に示すように，斜め方向にも固体が成長し，ランダムな一次枝を配向させる様子が確認できた． $G = 5$ K/mm の計算の場合のみ，計算領域底面に完全に固相が濡れ広がる前に計算領域の z 方向への移動が開始した．そのため， $G = 5$ K/mm の場合のみ，図 2.8(b)に示すように計算

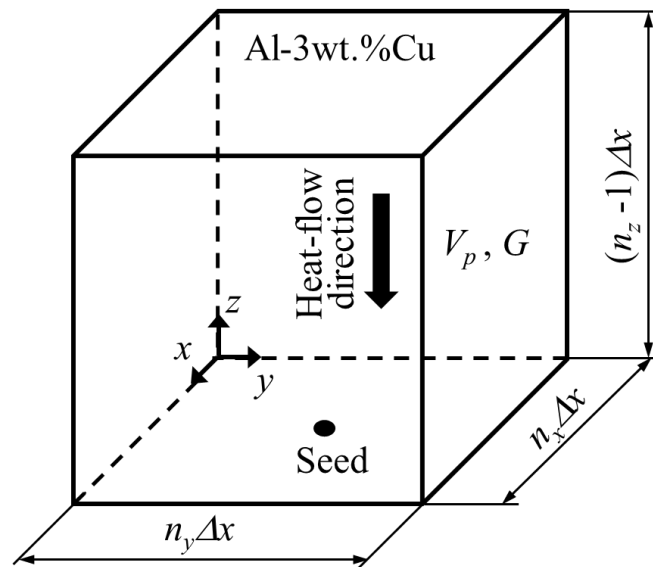


Fig.2.6 Computational domain. n_x , n_y , and n_z are the number of lattice points in the x -, y -, and z -directions, respectively. Heat-flow direction is set to the z -direction.

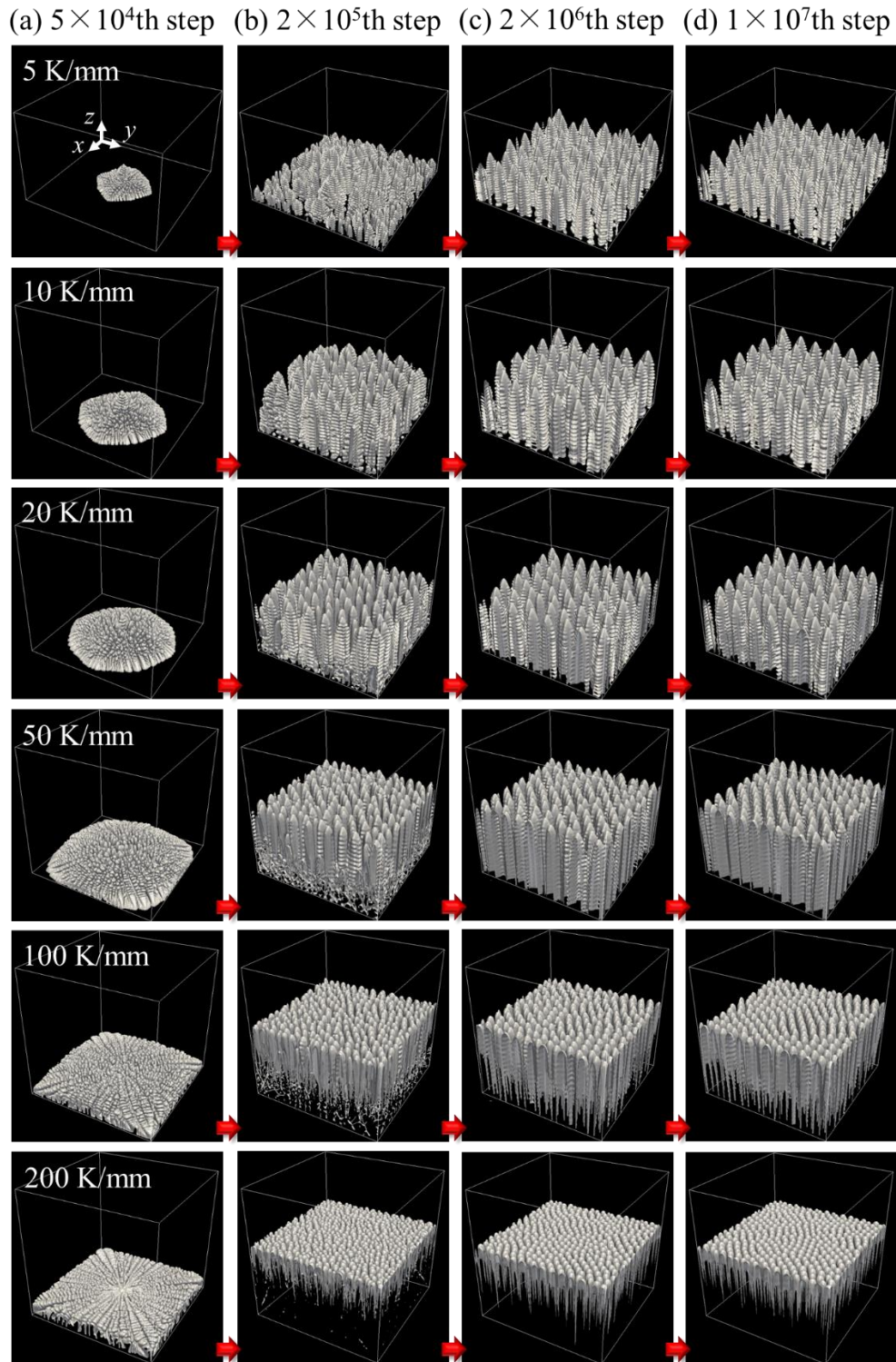


Fig.2.7 Bird's-eye view of time slices: (a) 5×10^4 th step (1.3 s), (b) 2×10^5 th step (5.4 s), (c) 2×10^6 th step (53.6 s), and (d) 1×10^7 th step (267.9 s). Note that the frame size is different only for $G = 5$ K/mm. Frame size is $1536\Delta x \times 1536\Delta x \times 1023\Delta x$ for $G = 5$ K/mm and $1024\Delta x \times 1024\Delta x \times 1023\Delta x$ for the other G .

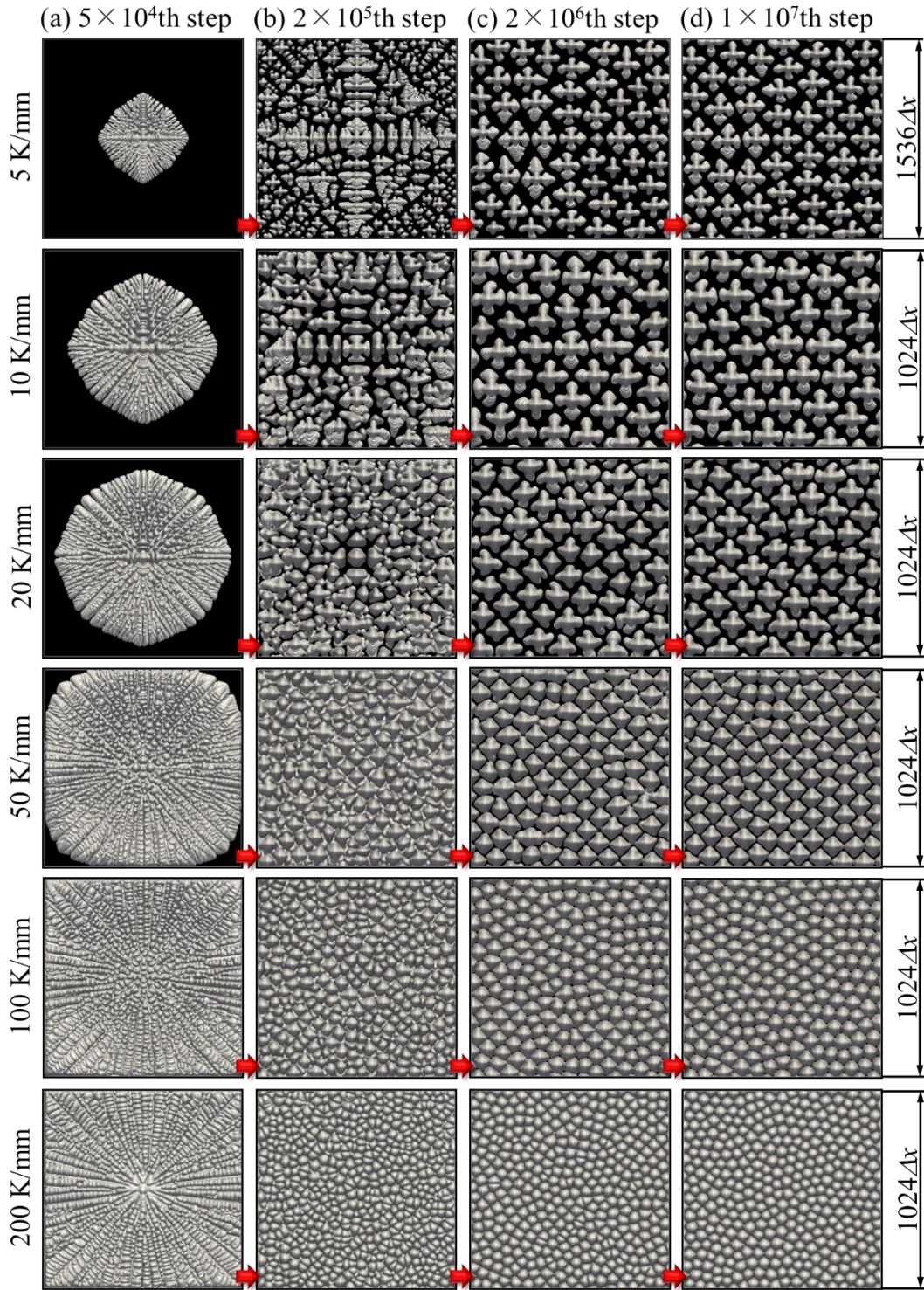


Fig.2.8 Time slices in the top view: (a) 5×10^4 th step (1.3 s), (b) 2×10^5 th step (5.4 s), (c) 2×10^6 th step (53.6 s), and (d) 1×10^7 th step (267.9 s). Note that the frame size is different only for $G = 5$ K/mm. Frame size is $1536\Delta x \times 1536\Delta x \times 1023\Delta x$ for $G = 5$ K/mm and $1024\Delta x \times 1024\Delta x \times 1023\Delta x$ for the other G .

領域の四隅近傍において他の粒よりも比較的小さな固相核が見られる．計算初期の図 2.8(b)においてデンドライト一次枝が計算領域中央から十字方向に並ぶ様子が確認できるが，図 2.8(d)に示す最終時刻におけるデンドライト形態では十字の配列は見られなくなった． $G = 10 \text{ K/mm}$ の場合の固液界面の形態変化は $G = 5 \text{ K/mm}$ の場合の変化と類似している．しかしながら，図 2.8(c)において，図 2.8(b)に見られるような計算領域中央から十字方向へ配向する様子は確認できない．また，図 2.8(c)において，デンドライト一次枝は互い違いに配向している． $G = 20 \text{ K/mm}$ の場合，図 2.8(a)に示す初期の粒形態は $G = 5 \text{ K/mm}$ および $G = 10 \text{ K/mm}$ の場合よりも円形に近く，図 2.8(b)において一次枝がランダムに配向している様子が見られた．その後，図 2.8(c)において一次枝が規則的に並ぶ様子が確認できた．また，それらの一次枝は図 2.8(d)に示す最終時刻においてさらに規則的に配向した． $G = 50 \text{ K/mm}$ の場合，図 2.8(d)の最終時刻において規則的な一次枝の配向性が得られている様子が確認できる． $G = 50 \text{ K/mm}$ の計算において，図 2.7 に示すように一次枝側面から二次枝が生成する様子が見られる．しかしながら，それらの二次枝はほとんど成長しない．そのため， $G = 50 \text{ K/mm}$ における界面形態は，セルデンドライト遷移過程付近におけるデンドライト形態であると言える．一次枝の配向性が，セルデンドライト遷移過程付近において最も規則的に配向することは，実験観察においても報告されている傾向である[148]． $G = 100 \text{ K/mm}$ の場合，図 2.7 に示すように界面形態は $G = 50 \text{ K/mm}$ の場合よりもセル形態に近づいている．一方で，一次枝側面がわずかに波打っている様子も確認できるため，この界面形態はセルデンドライト遷移過程付近のセル形態であると言える．図 2.8(d)に示すように， $G = 100 \text{ K/mm}$ の結果と $G = 50 \text{ K/mm}$ の結果を比較すると， $G = 50 \text{ K/mm}$ の方がより規則的に配向しているように見える． $G = 200 \text{ K/mm}$ の計算ではセル形態が確認できる． $G = 200 \text{ K/mm}$ の場合，一次枝が不規則に並んだ $\langle 100 \rangle$ 方向の判定が難しい組織形態が得られている．

図 2.9 に 一次枝の数の時間変化を示す．ここで，一次枝の先端位置が z 方向の位置 $486\Delta z$ ($G = 5 \text{ K/mm}$), $461\Delta z$ ($G = 10, 20 \text{ K/mm}$), $587\Delta z$ ($G = 50, 100, 200 \text{ K/mm}$)を超える一次枝のみを数えた．これらの位置は，一次枝の数を測定するにあたって，デンドライトの二次枝を一次枝と誤判定しない高さを基準として設定した． $G = 5 \text{ K/mm}$ と $G = 10 \text{ K/mm}$ の場合，図 2.7(b)に示すように計算初期において計算領域境界近傍のデンドライトの成長が領域中央のデンドライトの成長よりも遅れており一次枝として判定されなかったため，一次枝の数は時間経過に伴い徐々に増加する．図 2.9 中において，一次枝の数が最大値を取る時刻を三角形印で示し，一次枝の数が一定となった最初の時刻を丸印で示す． $G = 200 \text{ K/mm}$ において計算の最終時刻近傍までセルが淘汰される様子が確認できた．このとき，セルの数は $7.96 \times 10^{6\text{th}}$ step において 356 個になり，それ以降は最終時刻まで生存したが，もし，より長時間の凝固計算を行った場合，セルの数がさらに減少する可能性も考えられる．その他の G の値では， $2 \times 10^{6\text{th}}$ step 近傍において一次枝の数が一定になっている．なお， $G = 10 \text{ K/mm}$ における一次枝の数 37 が $G = 5 \text{ K/mm}$ に

おける一次枝の数 51 よりも小さいのは、計算に用いた領域サイズに関して $G = 5 \text{ K/mm}$ よりも $G = 10 \text{ K/mm}$ の方が小さいためである。

(3) 一次枝配列

一次枝の配向性に関する評価は、最小木法[166]やフーリエ変換、ボロノイ分割によって実施されてきた[23, 148-149, 156]. 最小木法は配向性に関する研究で最も頻繁に用いられてきた手法であるが[146, 150-151, 167-168], Napolitano と Black によって評価点の数が 200 以下の場合に計算精度が大幅に低下することが指摘されている[150]. 図 2.9 に示すように、本計算において定常成長状態における一次枝の数は $G = 200 \text{ K/mm}$ の場合を除き全て 200 以下である. そのため、最小木法やフーリエ変換のような統計的な評価手法は本研究においては適していないと考えられる. そのため、本研究では、セル/デンドライトの配向性を評価するためにボロノイ分割を用いた.

図 2.10 に、計算領域を一次枝の先端位置に基づいてボロノイ分割した図の時間変化を示す. 図中において、白線の頂点部分が一次枝の先端位置を示している. ボロノイ分割されたボロノイ多面体の辺を黒線で示す. 各多面体は辺の数に応じて色分けされる. また、一次枝先端位置に関するドロネー三角形分割を白線で示す. なお、ドロネー三角形分割とボロノイ分割は双対である. ドロネー三角形分割における各辺の長さは局所的な一次枝間隔として定義し、以降の評価に用いる. ドロネー三角形分割とボロノイ分割は両方とも周期境界条件を考慮して実施した. $G = 5 \text{ K/mm}$ の場合の図 2.10(a)–(c)と、 G

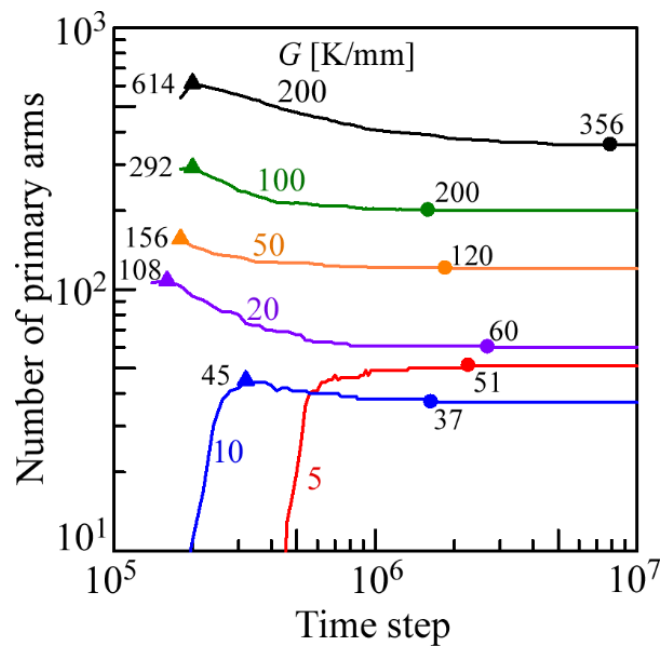


Fig.2.9 Changes in the number of primary arms. Triangular and circular marks show the time steps where the number of primary arms is the maximum and reaches the constant, respectively.

= 10 K/mm の場合の図 2.10(a)において、その他の G の値の図と異なる時刻の図を示している。 $G = 5$ K/mm の場合を除き、図 2.10(a)に示す図の時間ステップは、一次枝の数が最大値に達する時刻とほぼ一致する。図 2.11 は、三角形から九角形までの各ボロノイ多角形の数の時間変化を示している。ここで、グラフ中の各線の色は図 2.10 中の各多面体の色と対応している。また、図 2.11 中において、灰色の太線は図 2.9 において示した一次枝の数の時間変化を示しており、灰色の破線は図 2.9 において丸印で示した一次枝の数が一定になる時刻を示している。

図 2.10 と図 2.11 に示すように、計算初期から全ての G の値に関して、赤で示す六角形がおおよそ支配的である。 $G = 5$ K/mm の場合において、一次枝の数が定常に達する $2.28 \times 10^{6\text{th}}$ step 以降、各ボロノイ多面体の数はほとんど変化しなくなる。 $G = 10, 20$ K/mm の場合、図 2.11 において灰色破線で示す時刻以降、六角形の数がわずかに増加した。これは図 2.10(c), (d)からも確認できる。 $G = 50, 100, 200$ K/mm の場合、六角形の数が $G = 10, 20$ K/mm の場合よりも大きく増加する様子が見られた。四角形と八角形は計算初期の一次枝の数が変化する間のみ観察され、それ以降はほとんど見られない。三角形と九角形は $G = 100, 200$ K/mm の計算初期のみわずかに観測された。四角形と八角形が消えた後、五角形と七角形の数が同じになり、五角形、六角形、七角形のみが残る。これは、六角形配列における典型的な五角形・七角形欠陥であると考えられる[169-170]。最終時刻における全多角形の総数に対する六角形の数の比は、それぞれ $G = 5, 10, 20, 50, 100, 200$ K/mm に対応して 0.53, 0.68, 0.63, 0.68, 0.74, 0.65 となった。このとき、 $G = 5$ K/mm を除き、比の値は全ておおよそ 0.7 であった。図 2.10(d)に示すように、 $G = 5$ K/mm における六角形の形状は全体的に不揃いな形状になっている。しかしながら、 $G = 10, 20$ K/mm においては、六角形の形状が $G = 5$ K/mm の場合よりも正六角形に近い規則的な形状になった。 $G = 50, 100, 200$ K/mm においては六角形がさらに正六角形に近づいている。特に、五角形・七角形欠陥に囲まれた六角形群において、正六角形配列が顕著に観察される。

最近、Tschopp らは一次枝間隔を評価するための手法として、距離基準の評価手法[152]とボロノイ分割に基づく評価手法を詳細に比較し、ボロノイ多面体に含まれる短い辺を除外して評価を行う改良ボロノイ分割法が組織構造の評価において最善であると結論付けた[155, 157]。図 2.12 に短い辺を含むボロノイ多面体の例を示している。なお、図 2.12 は $G = 20$ K/mm の計算の $5 \times 10^{5\text{th}}$ step におけるボロノイ分割の拡大図である。図に示す Cell 1, 2, 3 はそれぞれボロノイ分割により六角形、五角形、七角形に分類される。しかしながら、破線円で示すように他の辺に比べてかなり短い辺が多面体に含まれており、分類された多面体と見なすことに不自然さがある。Tschopp らは、このような短い辺をボロノイ多面体から除去することを提案している[157]。一方で、この手法においては、削除する辺の長さに関して閾値を必要とする。そこで、本研究では、閾値を必要としない新たな手法を提案する。ここで、ボロノイ多面体の辺を削除する基準に

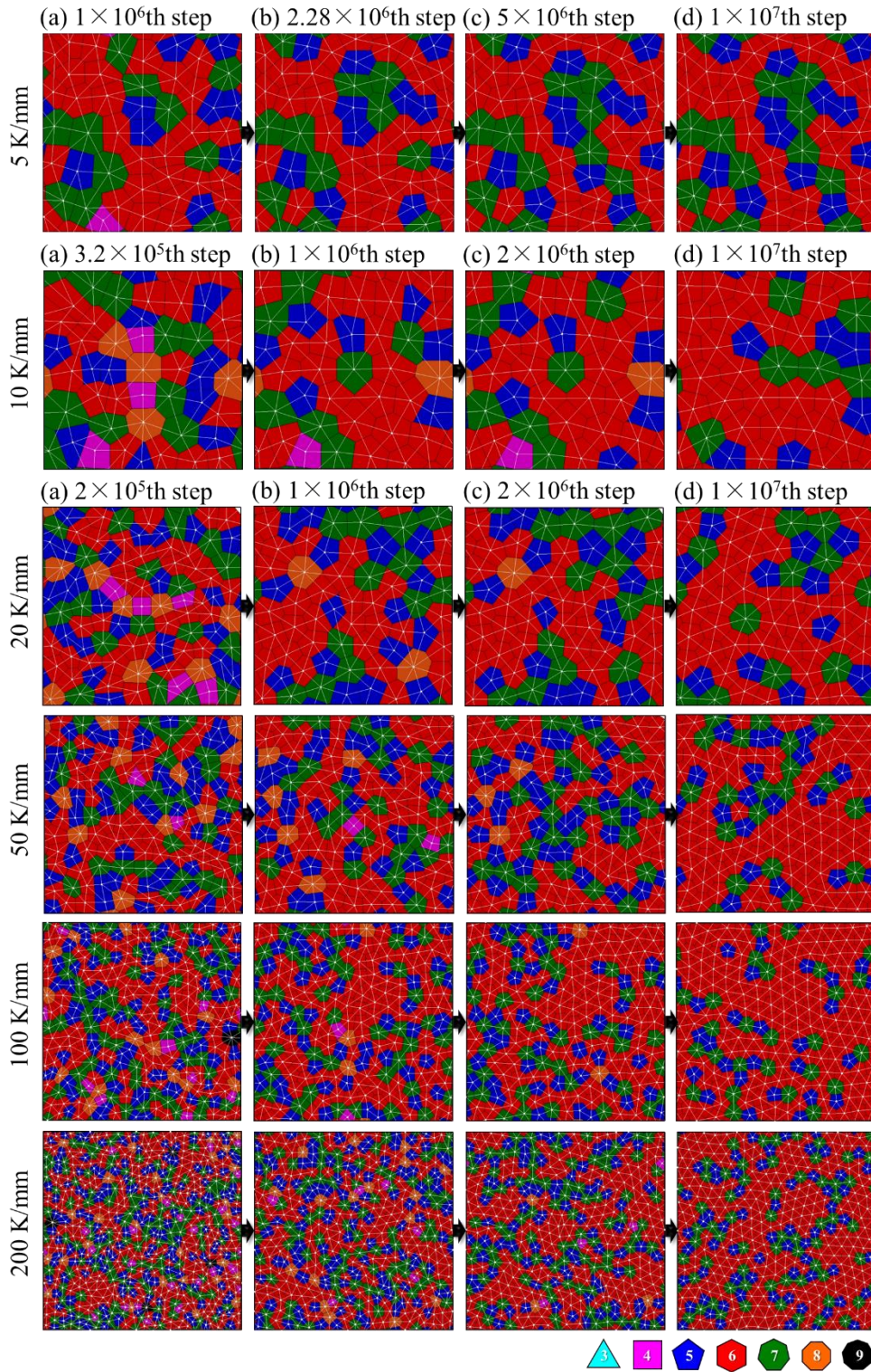


Fig.2.10 Time changes of tip positions of primary arms (white squares), Voronoi polygons (black lines), and Delaunay triangles (white lines). Voronoi polygons are painted by colors that distinguish the polygon. Note that the frame size is different only for $G = 5 \text{ K/mm}$. Frame size is $1536\Delta x \times 1536\Delta x \times 1023\Delta z$ for $G = 5 \text{ K/mm}$ and $1024\Delta x \times 1024\Delta x \times 1023\Delta z$ for the other G .

ついて、ボロノイ多面体の辺とそれに対応するドロネー三角形の辺とが交わらないことと設定する．具体例として図 2.12 に示すように、ボロノイ多面体の辺 S1 は対応するドロネー三角形の辺 L1 の垂直二等分線の一部である．しかしながら、S1 と L1 は互いに交差しない．この場合、S1 は Cell 1 と Cell 3 から除去され、L1 も局所的な一次枝間隔の評価から除外する．この提案手法では、Cell 1 と Cell 2 は四角形となり、Cell 3 は五角形となる．この判定は図 2.12 に示す多面体の形状から妥当であると判断した．この時、一点鎖線で囲んだ比較的長い辺 S3 も Cell 1 より除去されている．提案手法を用いてボロノイ多面体を再評価したところ、図 2.11 は図 2.13 に修正された．図 2.13 より、計算初期において、辺の数が 6 以上の多面体の数が減少し、その他の多面体の数が増加していることが確認できた．しかしながら、時間の経過に伴って、六角形の数は一貫して増加し図 2.11 の結果に近づいた．これは、六角形を正六角形に近づけるように一次枝先端の位置が移動したことを意味している．つまり、一次枝先端位置は一次枝間隔が均一になるように移動する．以降、提案手法を修正ボロノイ分割法と表記する．

(4) 一次枝間隔

平均一次枝間隔 λ_{ave} は凝固組織を特徴付ける最も重要な要素である． λ_{ave} の推定手法として様々な手法が提案されているが、その中でもカウント法は最もよく用いられる手法である．カウント法では、 λ_{ave} は $\lambda_{ave} = B(A/N)^{0.5}$ と計算される．ここで、 N は面積 A の中にある一次枝の数、 B は一次枝配列に依存した係数である．ここで、四角形配列の場合は $B = 1$ 、六角形配列の場合は $B = 1.07$ 、ランダム配列の場合は $B = 0.5$ である[142]．このように、カウント法を用いる場合は事前に一次枝配列を評価する必要があり、 N が

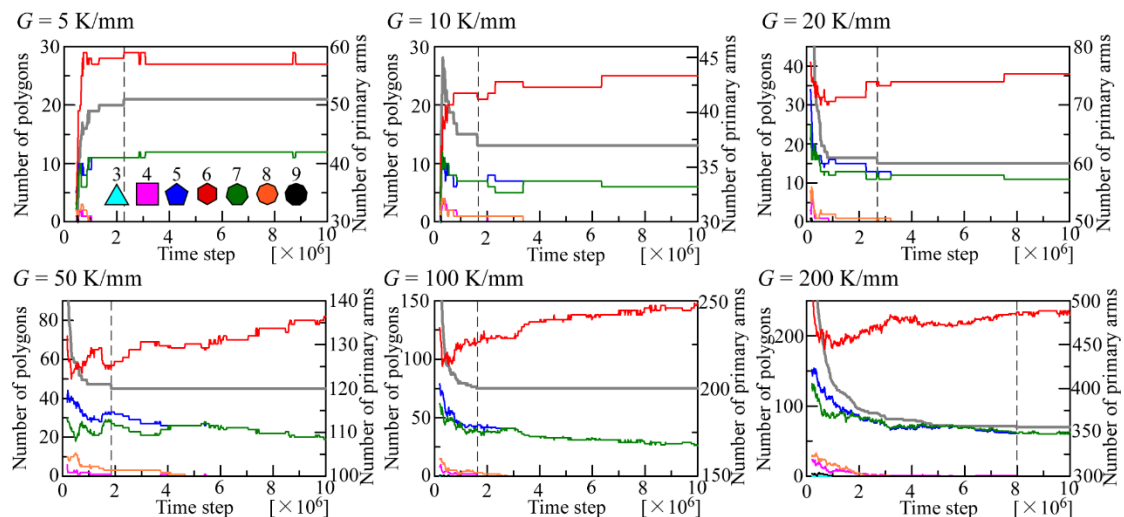


Fig.2.11 Changes in each polygon. The colors of lines correspond to those in Fig. 2.10. The gray line shows the number of all primary arms, and the dashed thin line indicates the time step where the number of primary arms becomes constant.

定数の場合 λ_{ave} も定数になる．実際の凝固組織の断面から λ_{ave} を算出する場合，ボロノイ分割法などとは違い各一次枝の重心位置の情報を必要としないカウント法はとても有用な手法である．一方，近年，一次枝の重心を自動的に検出する手法が開発され[171-172]，配向性の評価にカウント法以外の手法を用いることも容易になった．

本研究では，ボロノイ分割に対応するドロネー三角形の辺の長さを局所的な一次枝間隔 λ として定義する．図 2.14 に四角形配列および六角形配列を仮定したカウント法，ボロノイ分割法，修正ボロノイ分割法のそれぞれを用いて算出した平均一次枝間隔 λ_{ave} の時間変化を示す．図 2.14 に示すように，カウント法より算出した λ_{ave} は一次枝の数が一定になった後は一定になっている．対照的に，ボロノイ分割より算出した λ_{ave} は， $G = 5 \text{ K/mm}$ の場合を除き，計算初期に増加した後は，一次枝の数が一定になった後も徐々に減少している．時間経過に伴い，ボロノイ分割法より算出した λ_{ave} は六角形配列を仮定したカウント法より算出した λ_{ave} の値に近づいた．修正ボロノイ分割法より算出した λ_{ave} は計算初期においてボロノイ分割より算出した λ_{ave} よりも小さい値になったが，時間の経過に伴い，ボロノイ分割法の λ_{ave} に近づいた．

図 2.15 において，最終時刻 $1 \times 10^7 \text{th step}$ における λ_{ave} と理論値および実験値との比較を行う．図 2.15(a)では，本計算結果 λ_{ave} を G の関数として Hunt の理論モデル[173]および Kurz と Fisher の理論モデル[174]と比較する．また，図 2.15(b)では，Gündüz と Çadırılı らによる系統的な実験結果[163]と比較するために， λ_{ave} は関数 $C^{0.25} V_p^{-0.25} G^{-0.25}$ として示す．図 2.15 より，本研究において 4 つの異なる手法で算出した λ_{ave} が，対数スケールのグラフにおいて互いにほぼ一致している様子が確認できた．また，本計算結果が，Hunt

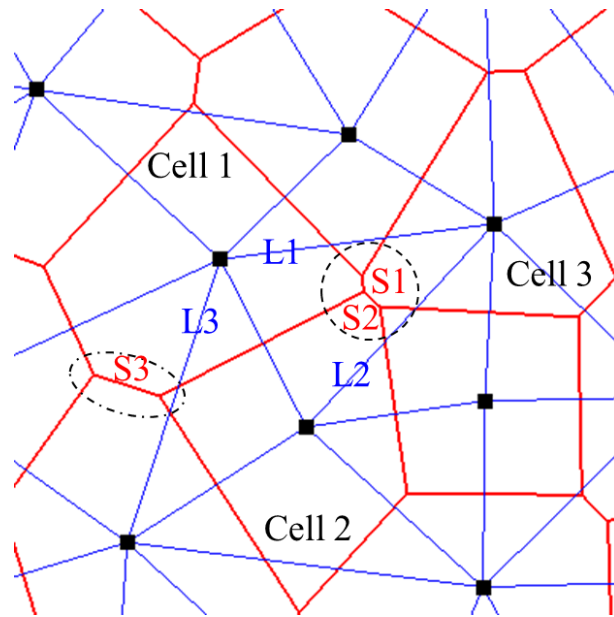


Fig.2.12 Tip positions of primary arms (black square mark), Voronoi cells (red line), and Delaunay triangles (blue line).

のモデルと Kurz と Fisher のモデルとの間に収まることを確認した. さらに, 図 2.15(b) において, $G = 5, 10, 20$ K/mm の結果が実験結果と良好に一致している様子が確認できる. また, その他の G の値についても, 実験結果を外挿するような良好な線形関係を示している. 図 2.16 にボロノイ分割より算出した 2×10^6 steps おきの一次枝間隔 λ の頻度分布を示す. いずれの場合においても時間経過に伴い λ の分布がシャープになってい

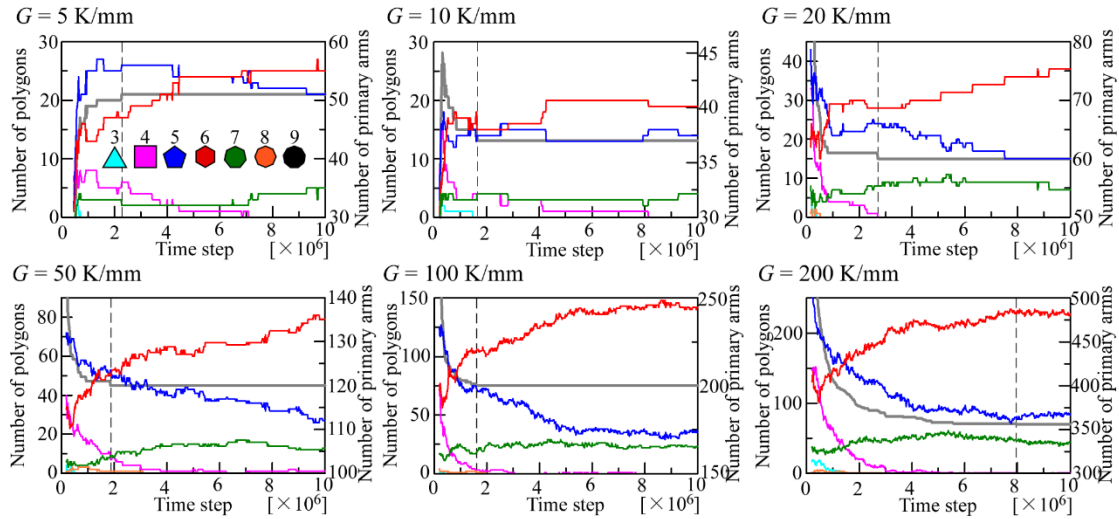


Fig.2.13 Changes in the number of each polygon classified by a modified Voronoi decomposition proposed in this study. All lines, including the color and type, correspond to those in Fig. 2.10.

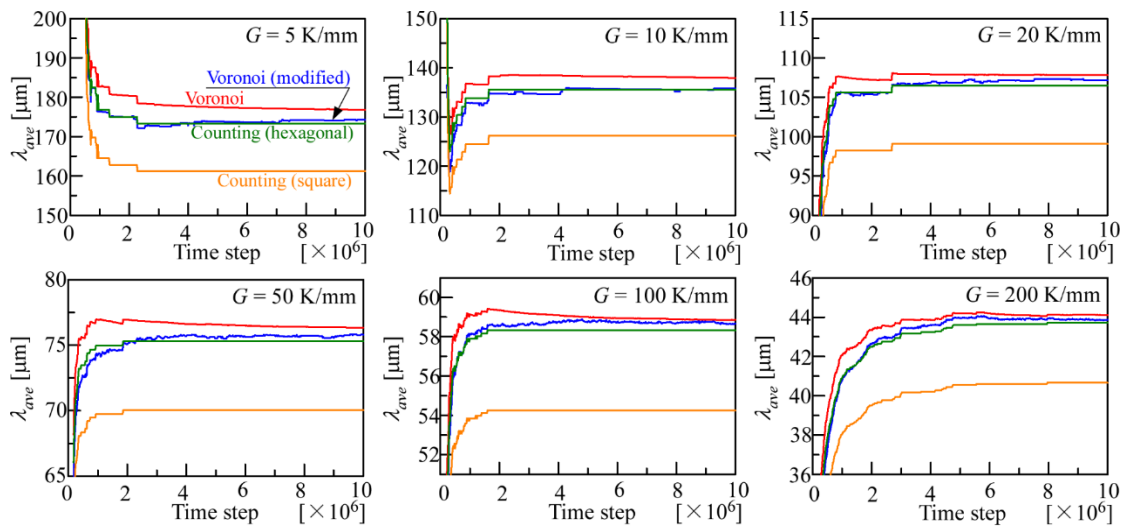


Fig.2.14 Changes in the average primary arm spacing λ_{ave} computed by the counting method assuming square and hexagonal arrays, Voronoi decomposition, and modified Voronoi decomposition.

る．また，黒線で示す最終時刻 1×10^7 th step における λ の分布について， λ が最大のピークを取る位置を軸に非対称性が見られる．より具体的には， $G = 5 \text{ K/mm}$ 以外の場合において， λ の小さい側において頻度が急激に増加し， λ の大きい側において頻度が緩やかに減少している．また， G が大きいほど λ の分布が対称性のあるガウス分布に近づいている． $G = 5, 10, 20 \text{ K/mm}$ の場合において，赤線で示す時刻 2×10^6 th step の λ の分布にダブルピークが見られた．これらのダブルピークは $G = 10, 20 \text{ K/mm}$ の計算では時間

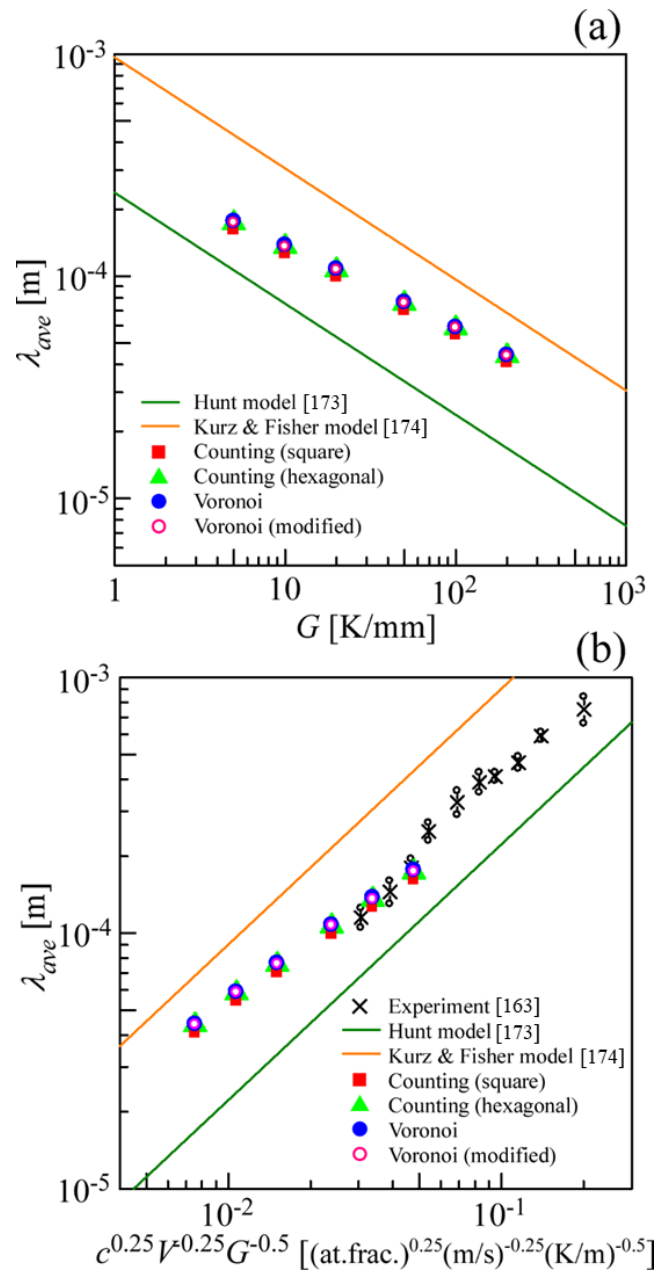


Fig.2.15 Comparisons of average primary arm spacing with theoretical values by the Hunt model and Kurz & Fisher model and with experimental results by Gündüz and Çadırılı.

経過に伴って消えたが、 $G = 5 \text{ K/mm}$ の計算では計算終了時刻まで消えずに残った．図 2.17 に修正ボロノイ分割より得られた λ の分布を示す．ここでは，前述のボロノイ分割より得られた λ の分布と同様の挙動が確認できた．図 2.16 と図 2.17 を比較すると，図 2.16 における λ が大きい側の分布の裾部分に見られるいくつかのピークが図 2.17 においては抑制されている様子が確認できるが，この違いは図 2.11 と図 2.13 における違いほど重要な意味を持たない．

図 2.18 は，図 2.16 に示す一次枝間隔の分布の標準偏差 S_λ の時間変化を示している．ここで，縦軸は λ_{ave} で正規化された S_λ を示している．図より，全ての G の値に関して，時間経過に伴い S_λ が単調に減少する様子が確認できた．これは，全て G の値において，

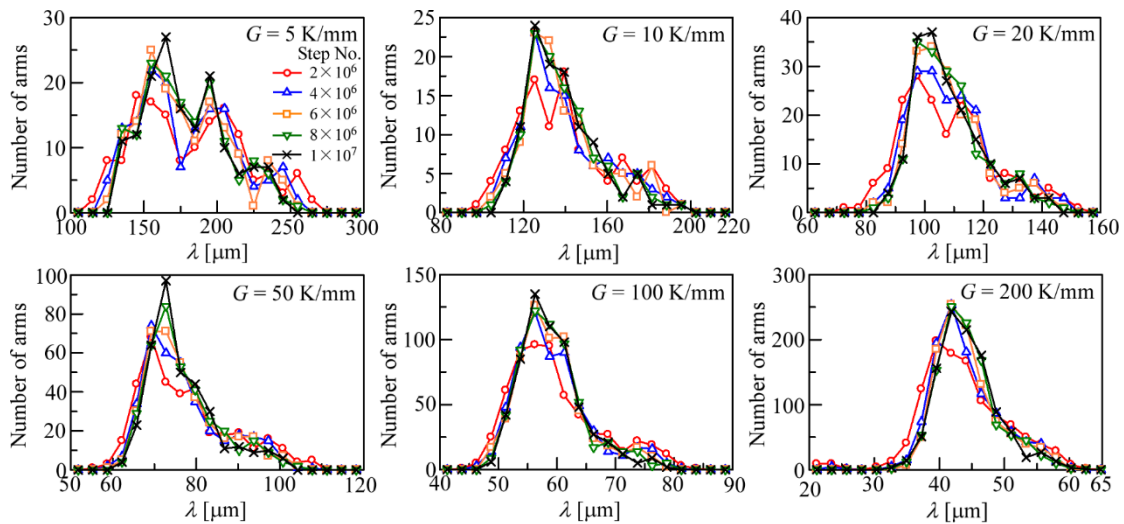


Fig.2.16 Frequency distributions of primary arm spacing computed by Voronoi decomposition.

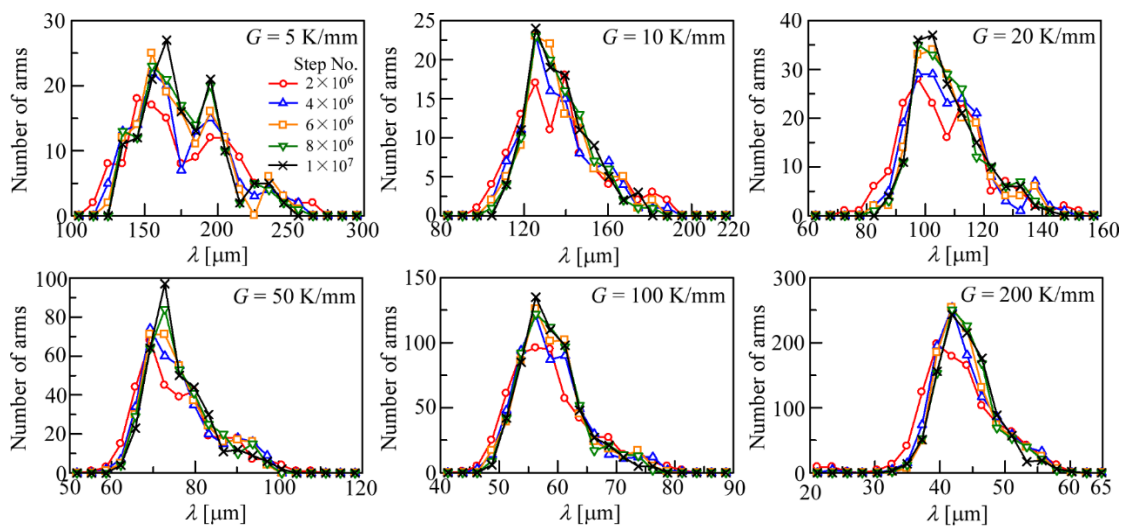


Fig.2.17 Frequency distributions of primary arm spacing computed by modified Voronoi decomposition.

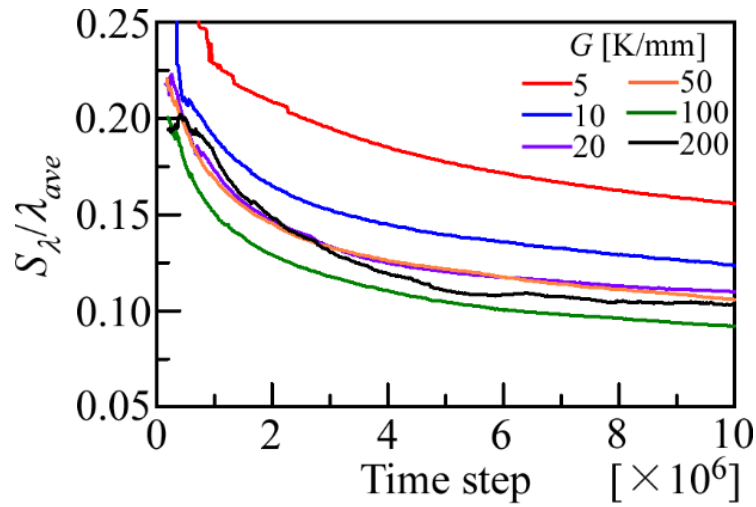


Fig.2.18 Changes in standard deviation of distribution of primary arm spacing.

一次枝間隔が均一になるように一次枝の先端位置が移動することを意味している。さらに、 $G = 200 \text{ K/mm}$ の場合を除いて S_λ/λ_{ave} は G の値が大きいほど小さくなった。 $G = 200 \text{ K/mm}$ の場合のみ、 S_λ/λ_{ave} が不規則な変化を示し、一次枝の数が一定になる 8×10^6 step 以降ほぼ一定になった。

(5) 考察

本計算結果は、デンドライト形態とセル形態の両方において六角形配列が支配的であることを示している。しかしながら、四角形配列が支配的であると報告している文献 [142, 158] も存在する。これに関しては、凝固の時間履歴に依存したもの、すなわち一次枝の成長過程において一時的に現れた四角形配列を観測したものであると考える。この点を確認するために、図 2.19 に示す理想的な条件下における 2 本のデンドライトの競合成長計算を行う。計算条件に関しては、 $G = 20 \text{ K/mm}$ とし、 x 方向に周期境界、 y 方向に零ノイマン境界を適用した $n_x \times n_y \times n_z = 128 \times 128 \times 1,024$ の計算領域を用いて 1.2×10^7 steps (321.4 s) の計算を行う。その他の計算条件は先に示した $G = 20 \text{ K/mm}$ の大規模計算と同様である。計算開始時に、2 個の固相核を Case A では位置 $(L_x/2, 0, 0)$ と $(L_x/2, L_y, 0)$ に、Case B では位置 $(7L_x/16, 0, 0)$ と $(9L_x/16, L_y, 0)$ に、Case C では位置 $(3L_x/8, 0, 0)$ と $(5L_x/8, L_y, 0)$ に、Case D では位置 $(L_x/4, 0, 0)$ と $(3L_x/4, L_y, 0)$ にそれぞれ配置する。ここで、 L_x と L_y は x 方向および y 方向の計算領域サイズである。Case A と Case D はそれぞれ四角形および六角形配列に対応する。図 2.19(a), (b) に計算初期の時刻 2×10^5 step (5.4 s) におけるデンドライト配列と計算終了時の時刻 1.2×10^7 step (321.4 s) におけるデンドライト配列をそれぞれ示す。図 2.19(a) と図 2.19(b) を比較すると、Case D ではデンドライトの配列は初期配列から変化しなかった。一方、Case B と Case C では、Case D の初期配列に近づくように配列が変化した。また、Case A では 2 本のデンドライトが x 方向にわずか

にずれ始める様子が見られた。これは、図 2.20 に示す Case A, B, C, D における x 方向一次枝間隔 λ_x の時間変化を見ても明らかである。図より、Case D において λ_x は一定値 $L_x/2$ を保ち続けた。また、Case B と Case C では、 λ_x がそれぞれ $L_x/4$ と $L_x/8$ から単調に増加し、 $L_x/2$ に漸近した。一方、Case A においては約 3×10^6 step まで $\lambda_x = 0$ を保ち続け、その後、2 本のデンドライトは離れ始めた。これは溶質濃度場に与えたノイズによって引き起こされたと考えられる。図 2.19 と図 2.20 の結果より、四角形配列は準安定状態であると結論付けられる。

実際の凝固では、分岐などの一次枝の生成条件に依存して一次枝の配列が四角形に配向する可能性も考えられる。その場合には配列が安定な状態ではないため、その他の安

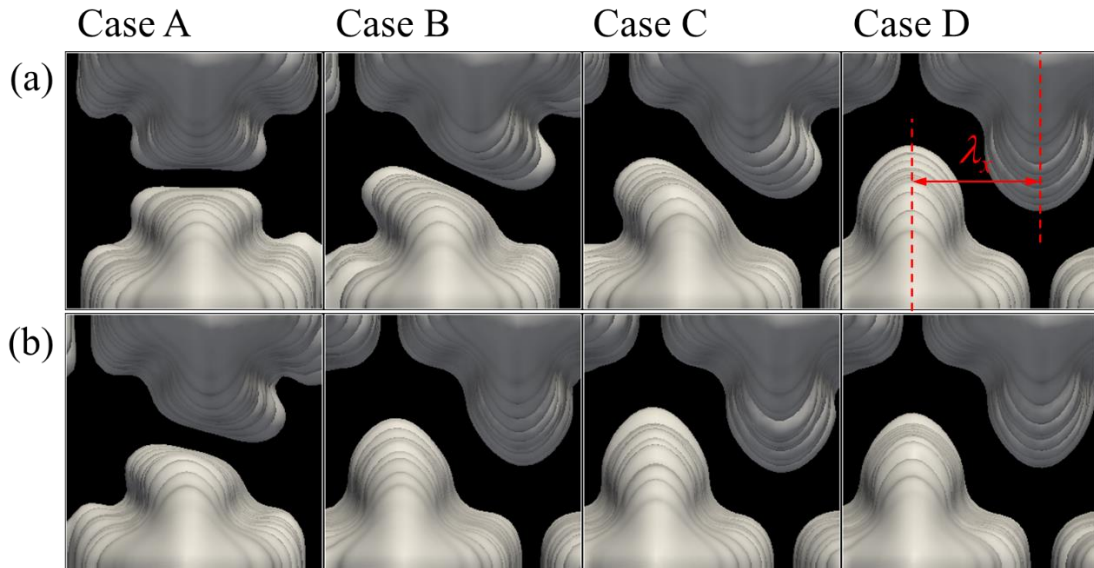


Fig.2.19 Changes in standard deviation of distribution of primary arm spacing.

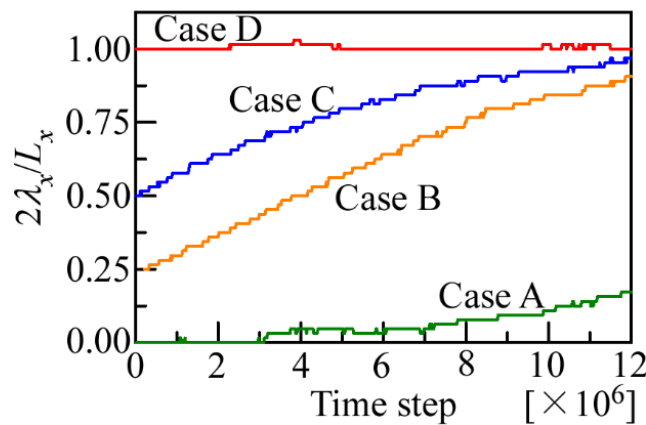


Fig.2.20 Dendrite spacing in x -direction, λ_x , during the simulations shown in Fig. 2.19. L_x is the size in the x -direction of the computational domain.

定な配列や六角形配列へと変化すると予想される．一方で，一次枝間隔が広い凝固条件では，一次枝同士の相互作用の影響が小さいため，四角形配列のような安定ではない配列でも長時間維持することができる．この傾向は，図 2.17 と図 2.18 においても示されており，一次枝配列の変化速度は G が小さいほど遅くなっている．

さらに，図 2.8(d)と図 2.10(d)に示すように， $G = 20 \text{ K/mm}$ と $G = 50 \text{ K/mm}$ において規則性の高い一次枝配列が観察できる．これらの G の値では，セルーデンドライト遷移過程近傍のデンドライト形態が見られた．このように一次枝が規則的に配向するためには，一次枝間隔が狭く柱状粒の形態異方性が小さいことが重要であると考えられる．基本的に一次枝の配列は一次枝近傍の溶質拡散層の相互作用によって決定される．固体から液相に放出された溶質は等方かつ円形に拡散するため，円柱の最密配列である正六角形配列が最も安定な配列になると考えられる．図 2.10(d)の $G = 100 \text{ K/mm}$ と $G = 200 \text{ K/mm}$ において，五角形・七角形欠陥に囲まれた規則的に配向する六角形群が見られた．しかしながら，それらの六角形群の方位は群ごとに異なっている．そのため，セル構造の場合，組織全体の配向の規則性は低下している．対照的に， G の値が小さい場合においては，デンドライト間隔が広いため，デンドライト一次枝の幹の形態異方性が拡散層に与える影響は小さいと考えられる．また，一次枝間の相互作用の影響もごく僅かなので，安定な配列への変化には長い時間が必要になる． $G = 20 \text{ K/mm}$ と $G = 50 \text{ K/mm}$ においては，一次枝間隔がそれほど広くないため，一次枝幹の異方性を有する形態が拡散層に影響を与えている．それゆえに，セルーデンドライト遷移過程近傍のデンドライト形態において，規則性の高い配列が観察されると考えられる．

最後に，界面幅 $W_0 = \Delta x / 0.8$ とし，デンドライト/セル一次枝先端の過冷却度 ΔT の収束挙動評価を行った．本評価では，計算コストを下げるために，図 2.21(a)に示すように四角形配列を仮定してデンドライト/セルの対称性を考慮して 1/4 計算領域を用いた．図 2.15(a)に示す四角形配列を仮定したカウント法より算出された λ_{ave} について最小二乗近似を適用することで， $\lambda_{ave} [\text{m}]$ と $G [\text{K/m}]$ について $\ln(\lambda_{ave}) = 5.55 - 0.372 \ln(G)$ の関係が得られた．計算領域を $L_x \times L_y \times L_z = \lambda_{ave} / 2 \times \lambda_{ave} / 2 \times 767.25 \text{ } \mu\text{m}$ と設定すると， L_x と L_y はそれぞれ $G = 5, 10, 20, 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ において関係式より $L_x = L_y = 81.77, 63.20, 48.85, 34.75, 26.86, 20.76 \text{ } \mu\text{m}$ と決定される．計算領域高さ $L_z = 767.25 \text{ } \mu\text{m}$ は先に行った大規模計算に用いた値と同様に設定した．計算開始時に 1 個の固相核を原点位置に配置し， x 方向境界と y 方向境界に零ノイマン境界条件を適用して 1/4 デンドライト/セルの成長計算を行った．図 2.21(b)に，全ての G の値について実施した先端過冷却度 ΔT の収束挙動評価の結果を示す．ここで， ΔT は定常成長中の一次枝先端の温度と Al-3wt%Cu の融点 952.19 K との差である．図 2.21(b)において，先端過冷却度 ΔT が G の値ごとにある値に収束する様子が見られた．ここで， G が大きいほど，良好な収束性を得るために小さい W_0 を必要とすることが分かった．図中の破線は大規模計算で用いた $W_0 = 0.9375 \text{ } \mu\text{m}$ を示している．この W_0 の値は G が低い場合に効率的に精度の良い計算を実施可能な値として事前

に選定した. 図 2.21(b)に示すように $W_0 = 0.9375 \mu\text{m}$ における計算精度は, G が高い場合にはそれほど高くない. しかしながら, 本研究で得られた一次枝の配列挙動は W_0 の値に強く影響を受けないと考えられ, この W_0 の値を選定したことは, 今回実施したような大規模計算において一次枝配列評価を効率的に実施する上で妥当であったと判断した. 収束挙動評価においては, 設定した一次枝間隔や配列が結果に影響する. そのため, それらの情報を大規模計算による評価の前に簡易かつ妥当に推定する手法が今後必要になると考えている. また, 小さい W_0 について評価する際に計算コストが膨大になる問題も解決すべき今後の課題である.

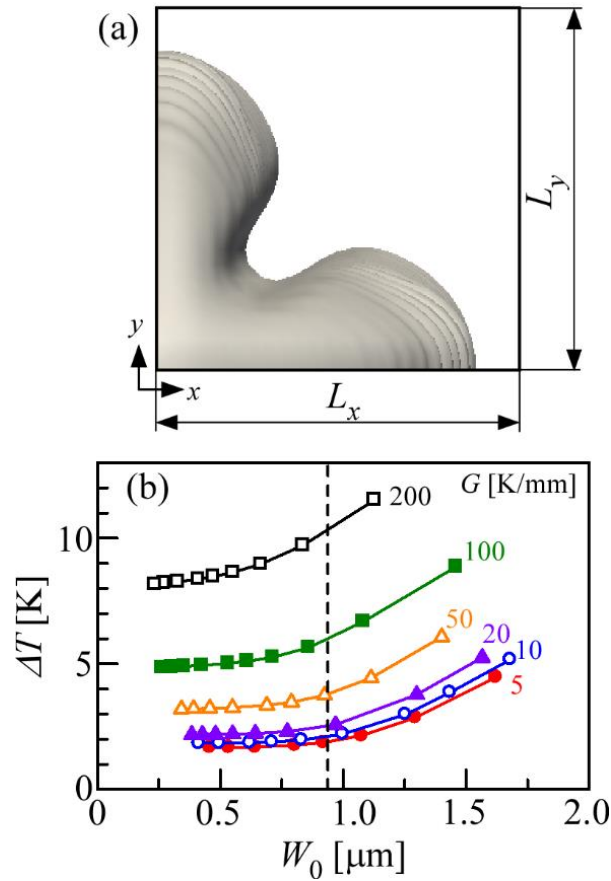


Fig.2.21 (a) Computational domain and (b) results of simulations in convergent behavior of tip undercooling of dendrite/cell, ΔT , for the interface thickness W_0 . The size of computational domain is set to $L_x \times L_y \times L_z = 81.77 \times 81.77 \times 767.25 \mu\text{m}^3$, $63.20 \times 63.20 \times 767.25 \mu\text{m}^3$, $48.85 \times 48.85 \times 767.25 \mu\text{m}^3$, $34.75 \times 34.75 \times 767.25 \mu\text{m}^3$, $26.86 \times 26.86 \times 767.25 \mu\text{m}^3$, and $20.76 \times 20.76 \times 767.25 \mu\text{m}^3$ for $G = 5, 10, 20, 50, 100$, and 200 K/mm, respectively. Here, a relation of $W_0 = \Delta x/0.8$ is kept through all the simulations.

2.4.2 二結晶

(1) 計算条件

次に、一方向凝固中の二結晶競合成長の薄膜計算および大規模計算をそれぞれ行う。図 2.22 に計算条件を示す。ここで、計算領域は $n_x \times n_y \times n_z$ 格子点に分割する。計算領域の ϕ と u の境界条件について、 x 方向には周期境界条件、 y 方向と z 方向には零ノイマン条件を適用した。境界条件の適用方法に依存して、実際の計算領域サイズは $n_x \Delta x \times (n_y - 1) \Delta x \times (n_z - 1) \Delta x$ である。熱流方向は z 方向に設定する。計算に用いる材料は Al-3wt%Cu とする。計算開始時、計算領域は Al-3wt%Cu の溶液に満たされており、計算領域底面において過冷度 $u_0 = -0.3$ であるとする。図 2.23 に計算領域底面への初期核配置を示す。薄膜計算においては、図 2.23(a) に示す type A と type B の 2 種類の核配置を用いる。Type A において、FO デンドライトと UO デンドライトは収束境界において 2 次元計算[80]の場合と同様に、正面から face-to-face に相互作用する。Type B においては、UO デンドライトは収束境界において FO デンドライトの間に侵入していく。本研究ではこのような相互作用を space-to-face 相互作用と呼称する。ここで、左端の 4 個の固相核は xyz 座標系の軸と一致する $\langle 100 \rangle$ 結晶方位を持つ FO 粒である。右端の 5 個の固相核は z 軸を y - z 平面上で反時計周りに θ_{UO} 回転させた方向を $[001]$ に持つ UO 粒である。各固相核は y 方向に $180\Delta x$ おきに等間隔に配置する。この間隔には、2 次元計算において 2 本の隣接する FO デンドライトが安定に成長できる最小の間隔と近い値を採用した。図 2.23(a) に示すように配置した FO と UO の固相核はそれぞれ FO1, FO2, ..., UO4, UO5 と示す。薄膜計算において、 n_x を $n_x = 1, 32, 64, 128, 192, 256$ と変えて計算を行う。ここで、 n_y と n_z は $n_y = n_z = 1,536$ で一定とする。大規模計算では、複数の FO デンドライトと UO デンドライトの粒界における相互作用を評価するために、計算領域を $n_x =$

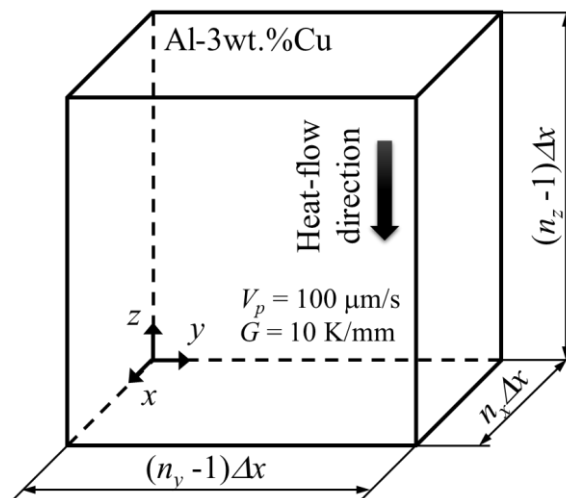


Fig.2.22 Computational domain used in this study. Here, n_x , n_y , and n_z are the number of lattice points in the x -, y -, and z -directions, respectively.

768, $n_y = n_z = 1,536$ とし, 初期固相核を図 2.23(b)に示すように配置する. 薄膜計算と大規模計算の両方において, UO デンドライトの傾き角は $\theta_{u0} = 5^\circ, 10^\circ, 15^\circ$ の 3 種類について計算を行う. その他の計算パラメータは, 全ての計算において温度勾配 $G = 20 \text{ K/mm}$, 引抜速度 $V_p = 100 \text{ } \mu\text{m/s}$, 格子幅 $\Delta x = 0.75 \text{ } \mu\text{m}$, 界面幅 $W_0 = \Delta x/0.8$, 時間増分 $\Delta t = 2.6786 \times 10^{-5} \text{ s}$ と設定した. 薄膜計算と大規模計算のそれぞれで $5 \times 10^6 \text{ steps}$ および $7 \times 10^6 \text{ steps}$ までの計算を行う. これらの計算ステップ数は, 引抜時間で 134.0 s および 187.5 s , 引抜距離で 13.4 mm および 18.8 mm にそれぞれ対応する. 一方向凝固計算を効率的に行うために, 第 2 章 2 節 1 項に示す計算領域移動法に基づいて, $1 \times 10^{6\text{th}}$ step まではデンドライトの z 方向先端位置を z 方向位置 $920\Delta x$ 以下に保つように, $1 \times 10^{6\text{th}}$ step 以降は $\Delta z/(V_p \Delta t)$ の周期ごとに 1 格子分, 計算領域を z 方向に移動させる.

(2) 薄膜計算

先行研究において実施された 2 次元評価[80, 135]の延長として, まず, 薄膜領域の厚み($n_x = 1, 32, 64, 128, 192, 256$), UO デンドライトの傾き角($\theta_{u0} = 5^\circ, 10^\circ, 15^\circ$), デンドライト配列(type A, type B)が, UO デンドライトと FO デンドライトが 1 対 1 で相互作用する理想的な条件において淘汰挙動に与える影響を評価する. 表 2.2 に FO デンドライトに成長を止められた UO デンドライトの数を示す. 例えば, 表 2.2 において, type A の $\theta_{u0} = 5^\circ, n_x = 32$ の場合, FO1 デンドライトの値が「2」になっている. これは, FO1 デンドライトが 2 本の UO デンドライト(UO1, UO2)の成長を止め, その後, 3 本目の UO デンドライト(UO3)に淘汰されたことを意味する. 全ての計算は $5 \times 10^6 \text{ steps}$ まで行われた. 表中の FO デンドライトが止めた UO デンドライトの数の横に付与される「-」は, その FO デンドライトが計算終了時に淘汰されずに残存していたことを示す. 表 2.2 よ

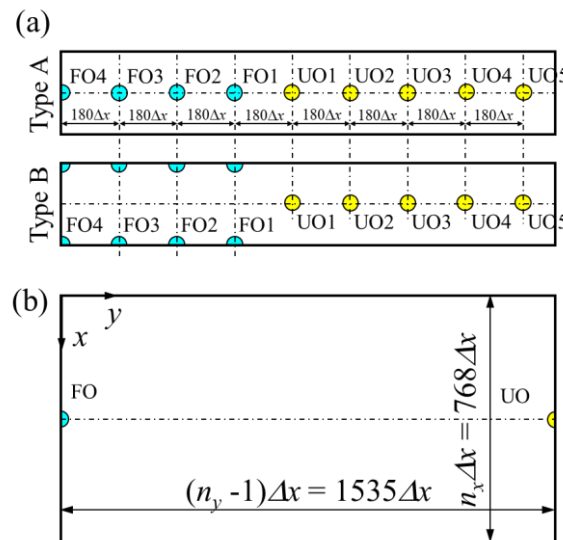


Fig.2.23 Initial seed arrangements for (a) thin-sample and (b) largescale simulations.

り、FO デンドライトを淘汰するのに必要な UO デンドライトの数は薄膜の厚みや UO デンドライトの傾き角の増加に伴い多くなることが確認できる。一方で、デンドライトの配列に関する影響は表 2.2 だけでは説明できない。表 2.2 において、type B の $n_x = 256$ に記載がないのは UO デンドライトが FO デンドライト間を通り抜けたためである。図 2.24 と図 2.25 に FO1 デンドライトが淘汰された直後の $\theta_{UO} = 5^\circ$ における type A と type B のデンドライト形態をそれぞれ示す。ここで、上側の図は側面図を、下側の図は上面図をそれぞれ示す。図中において、 $\phi = 0$ の固液界面について、FO 粒を水色で、UO 粒を黄色でそれぞれ示す。 $n_x = 1$ (2D) の場合、図 2.24(a) と図 2.25(a) に示すように、固液界面は線になり、デンドライト形態が type A と type B で同一になる。図 2.24 と図 2.25 に示すように、薄膜の厚みが増えるほど、 x 方向(厚さ方向)の二次枝の成長が顕著になる。図 2.26 に、 $\theta_{UO} = 5^\circ$ における FO1 デンドライト先端の軌跡を示す。図中において、青線と赤線はそれぞれ type A と type B の結果を示す。また、破線は FO1 デンドライトの y 方向初期核位置を示す。FO1 デンドライト先端の軌跡は、先端位置が z 方向の 870 番目の格子点位置に達するまで描画する。Type B の $n_x = 256$ の場合を除き、先端の軌跡の終点位置における時刻は図 2.24 と図 2.25 の時刻と対応する。図 2.27 に $n_x = 192$, $\theta_{UO} = 5^\circ$, type A の場合の収束粒界で FO1 と UO3 デンドライトが相互作用する際の上面図を示している。図中に、デンドライト表面($\phi = -0.9$)と z 方向 880 番目の格子点位置における x - y 平面上の溶質濃度分布をそれぞれ示している。図 2.27(a)–(e)の時刻は、図 2.26(d)に示す「a」–「e」の点の位置における時刻と対応している。また、2本の破線は、UO2 デンドライトが淘汰された直後の $1.54 \times 10^{6\text{th}}$ step と UO3 デンドライトが淘汰された直後の $2.24 \times 10^{6\text{th}}$ step における FO1 デンドライト先端位置を示している。図 2.27(a)において、デンドライト周辺の溶質拡散層はそれぞれ独立しており、拡散層同士の相互作用の影響は小さい。その後、図 2.27(b), 2.27(c), 2.27(d)に示すように、時間経過に伴って FO1 と UO3 デンドライト周辺の溶質拡散層の相互作用は強くなっている。また、FO1 と UO3 デンドライトの表面積も時間経過に伴い減少した。これは、図 2.26(d)に示すように、これらのデンドライトの先端位置が z 方向に下がったことを意味している。ここで、デンドライト先端位置は、FO1 デンドライトよりも UO3 デンドライトの方が下がっており、図 2.27(e)において UO3 デンドライトが完全に淘汰されている。また、FO1 デンドライト先端位置は左側に移動した。その後、FO1 と FO2 デンドライトとの間隔が安定に成長可能な臨界距離よりも縮まったことにより、FO1 デンドライトは UO4 デンドライトに淘汰された。図 2.27 に示すように、異常淘汰がデンドライト先端の溶質の相互作用によって生じることは明らかである。UO デンドライトの傾き角が異常淘汰に与える影響は 2 次元計算[80]の場合と同様であった。表 2.2 より、 θ_{UO} が大きいほど FO1 デンドライトの淘汰に必要な UO デンドライトの数が大きくなることは明らかである。また、 θ_{UO} の増加に伴い、UO デンドライトの先端位置は FO デンドライトの先端位置よりも下がった。さらに、収束粒界において UO デンドライトが FO デンドライトに近づいたと

Table 2.2 Number of UO dendrites blocked by the FO dendrite. In some cells, “–” implies that the computation was terminated after 5×10^6 steps in these cases.

(a) $\theta_{UO} = 5^\circ$					
n_x	type	FO1	FO2	FO3	FO4
1		1	1	0	0
32	A	2	2	0	-
	B	2	2	0	-
64	A	3	1	1-	
	B	3	1	1-	
128	A	3	1	1-	
	B	3	1	1-	
192	A	3	2	-	
	B	3	2	-	
256	A	3	2	-	
(a) $\theta_{UO} = 10^\circ$					
n_x	type	FO1	FO2	FO3	FO4
1		1	4	0	0
32	A	4	1	3	0
	B	4	1	2	1
64	A	6	4-		
	B	5	6-		
128	A	12-			
	B	12-			
192	A	12-			
	B	12-			
256	A	12-			
(a) $\theta_{UO} = 15^\circ$					
n_x	type	FO1	FO2	FO3	FO4
1		3			
32	A	14-			
	B	15-			
64	A	16-			
	B	15-			
128	A	16-			
	B	16-			
192	A	18-			
	B	17-			
256	A	18-			

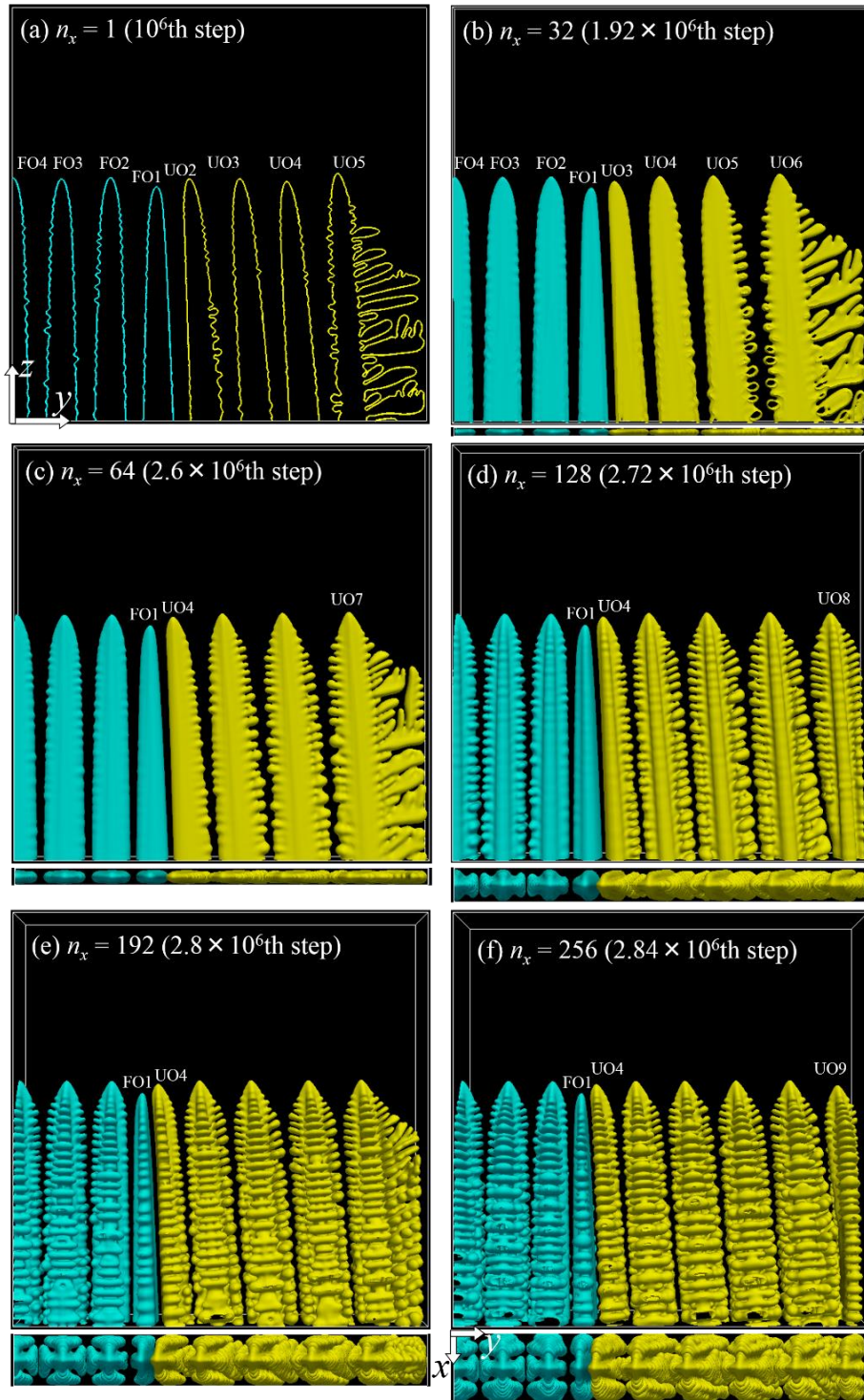


Fig.2.24 Dendrite morphologies in thin-sample simulations for type A with $\theta_{UO} = 5^\circ$. The upper figures show the side view from the positive x -axis direction, and the bottom figures show the top view from the positive z -axis direction. The solid-liquid interface with $\phi = 0$ is shown in light blue for the FO grain and yellow for the UO grain. Each time step is nearly immediately after overgrowth of the FO1 dendrite.

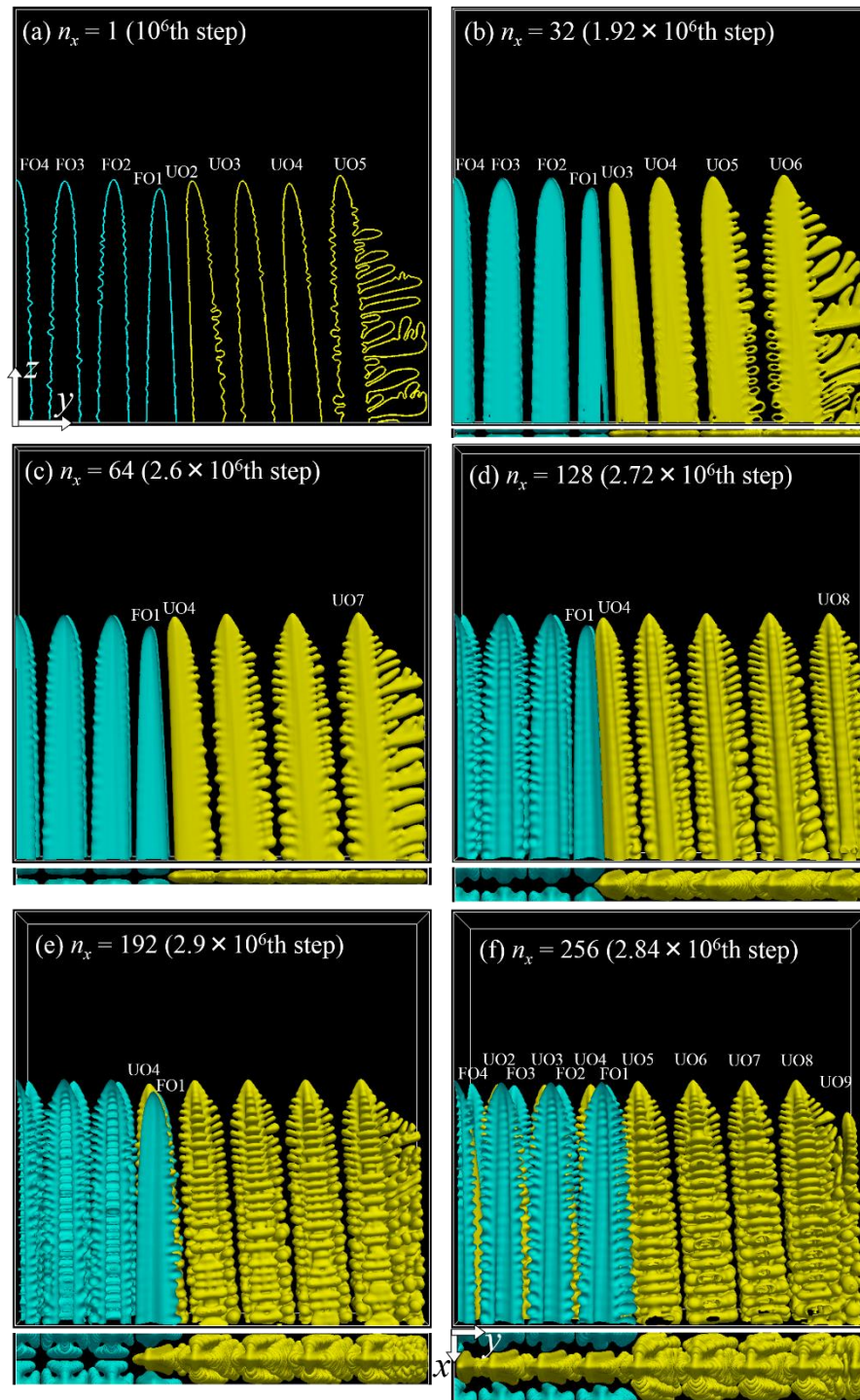


Fig.2.25 Dendrite morphologies in thin-sample simulations for type B with $\theta_{UO} = 5^\circ$. The upper figures show the side view from the positive x-axis direction, and the bottom figures show the top view from the positive z-axis direction. The solid-liquid interface with $\phi = 0$ is shown in light blue for the FO grain and yellow for the UO grain. Each time step is nearly immediately after overgrowth of the FO1 dendrite.

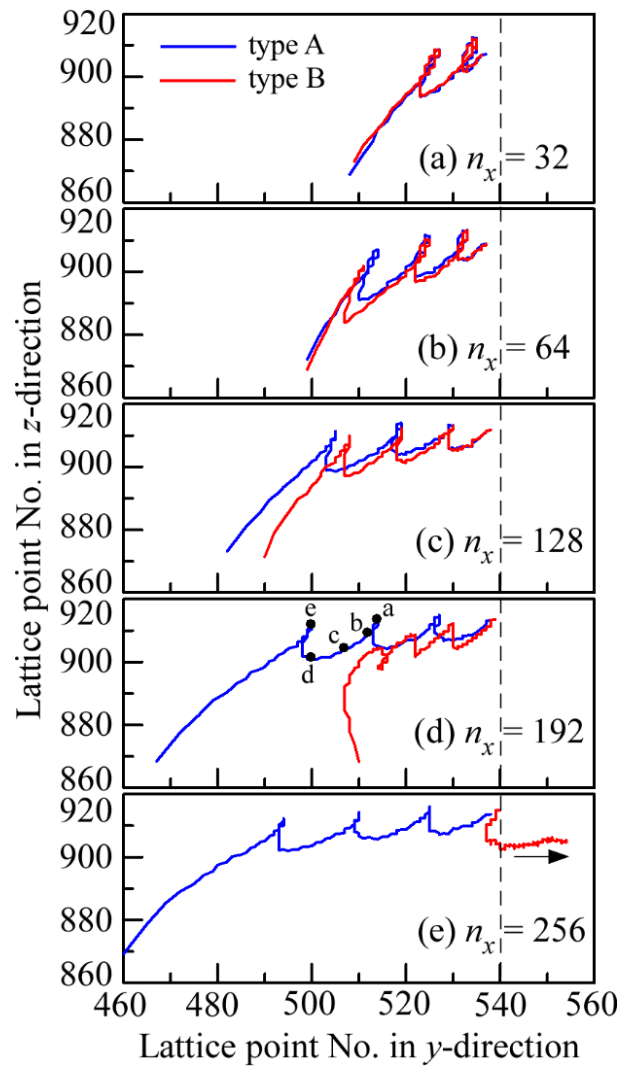


Fig.2.26 Tip trajectories of FO1 dendrite from the 0.24×10^6 th step until when the FO1 dendrite is overgrown or the 5×10^6 th step only for type B with $n_x = 256$.

きに FO デンドライトが水平方向に移動する量は、 θ_{UO} が大きいほど小さくなった。傾き角が大きいほど UO デンドライトの移動速度は速くなるため、収束粒界において各 FO および UO デンドライト同士が相互作用する時間は短くなる。これが、 θ_{UO} が大きいほど異常淘汰に必要な時間が長くなる理由である[80, 135]。 $\theta_{UO} = 15^\circ$ の場合において、 $n_x = 1$ を除いて 5×10^6 th step まで FO1 デンドライトは淘汰されない。しかしながら、UO デンドライトが FO1 デンドライトに近づいたとき、全ての条件において、FO1 デンドライトは FO2 デンドライト側に移動した。これは、計算を延長した場合、全ての計算で FO デンドライトが淘汰されることを意味している。収束粒界における FO と UO デンドライト間の相互作用は、溶質拡散層が重なることによって生じる[80]。3次元計算においては、2次元計算の場合と違って固相から液相に放出された溶質は3次的に拡散

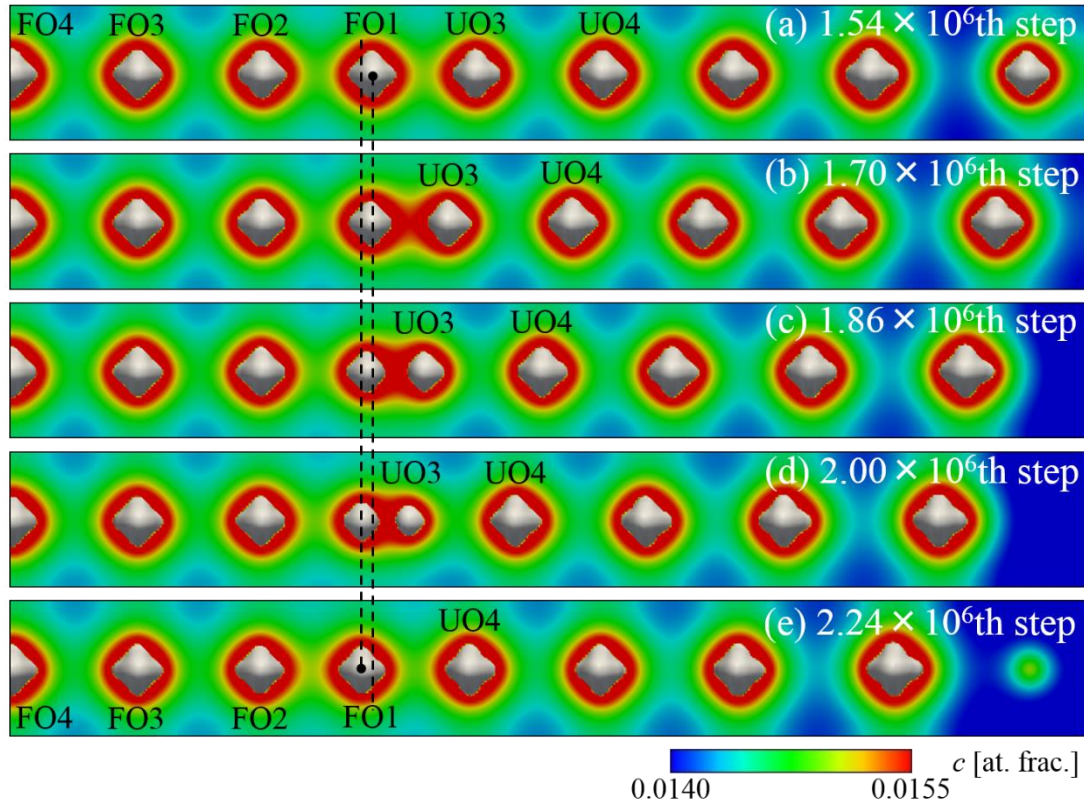


Fig.2.27 Time slices of top views of dendrite surface ($\phi = -0.9$) and concentration distribution on the surface at the 880th lattice point in the z-direction for $n_x = 192$, $\theta_{UO} = 5^\circ$, and type A: (a) 1.54×10^6 th step (41.3 s), (b) 1.70×10^6 th step (45.5 s), (c) 1.86×10^6 th step (49.8 s), (d) 2.00×10^6 th step (53.6 s), and (e) 2.24×10^6 th step (60.0 s).

する．そのため，薄膜領域の厚みが増えるほど，収束粒界における FO と UO デンドライトの相互作用は小さくなる．これは，図 2.24 において薄膜厚みが増えるほど FO1 と UO デンドライトの間隔が狭くなることから確認できる．さらに，図 2.24 に示すように，淘汰直前の FO1 デンドライトの位置は薄膜厚みが増えるほど左側に移動している．これは，隣接する 2 本の FO デンドライトが安定に成長可能な最小の間隔は薄膜厚みが増えるほど小さくなるためである．図 2.26 において type A のみを考慮すると，UO デンドライトが FO1 デンドライトに近づく時，FO1 デンドライトは左側に移動しながら先端位置が下がっていく．その後，UO デンドライトが FO1 デンドライトによって淘汰されると，FO1 デンドライトの先端位置は再び上昇する．このとき，薄膜厚みの小さい計算においては，先端位置はわずかに右側に移動した．この右側への水平移動量は薄膜厚みが増えるほどに減少した．一方で，FO1 デンドライトに UO デンドライトが近づいた際の左側への水平移動量は薄膜厚みが増えるほど増加した．これは，薄膜厚みの増加に伴い隣接する 2 本の FO デンドライトが安定に成長可能な最小の間隔が小さくなったた

めである．この傾向は UO デンドライトにおいても見られる．図 2.24 において， $n_x = 1$ では UO デンドライトの数が 4 本であるのに対して， $n_x = 256$ では 6 本の UO デンドライトが確認できた．さらに，表 2.2(c)に示すように， $\theta_{UO} = 15^\circ$ において，時刻 5×10^6 step までに成長を止められる UO デンドライトの総数は n_x の増加に伴って増えている．これは，UO デンドライト間隔が薄膜厚さの増加に伴って減少するからである．その結果，

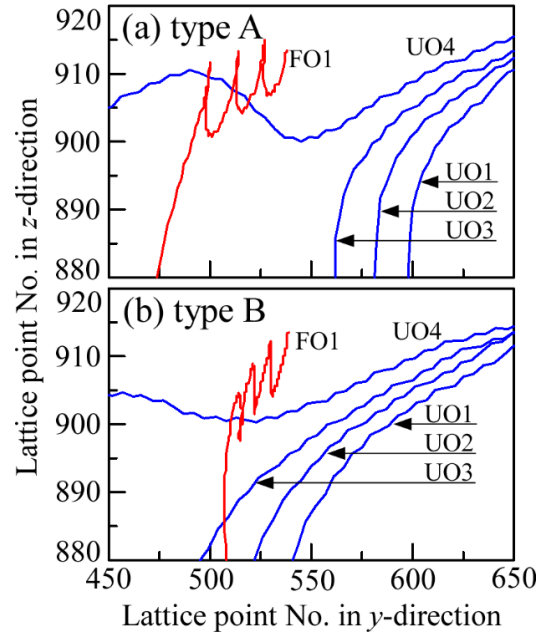


Fig.2.28 Tip trajectories of FO1 and UO1-4 for (a) type A and (b) type B when $n_x = 192$.

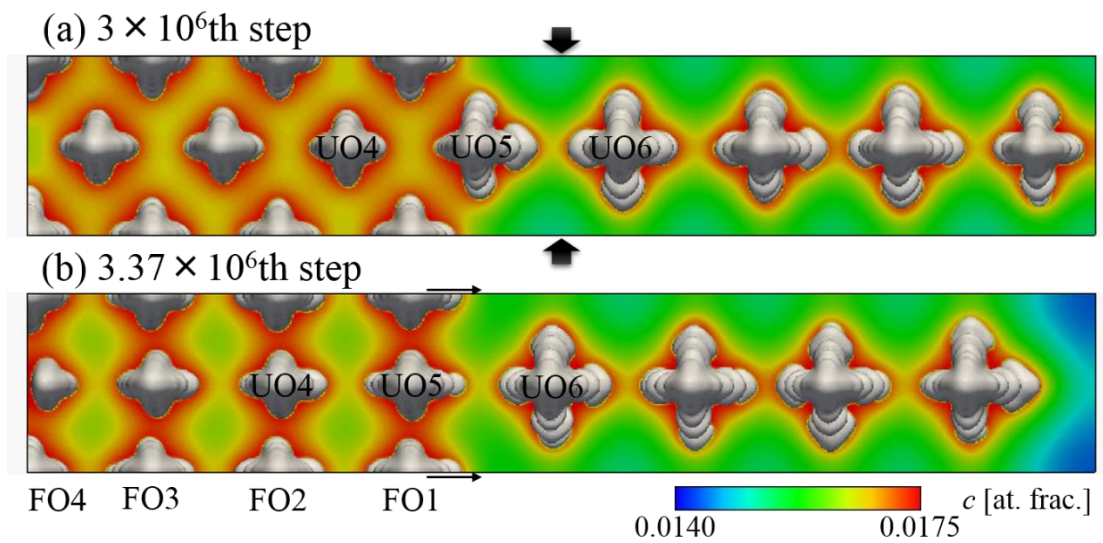


Fig.2.29 Top views of dendrite surface ($\phi = -0.9$) and concentration distribution on the surface at the 800^{th} lattice point in the z -direction for $n_x = 256$, $\theta_{UO} = 5^\circ$, and type B.

薄膜厚みが増加するほど、異常淘汰は発生しにくくなる。

図 2.24 と図 2.25 に示す type A と type B の $n_x = 32$ と $n_x = 64$ の結果を比較すると、ほぼ同様の成長形態が見られる。一方で、type B の $n_x = 128$ と $n_x = 192$ の場合において、側面図では FO1 と UO4 デンドライトが重なる様子が見られた。この時、上面図では UO4 デンドライトが FO1 デンドライトの間に侵入していく様子が見られる。図 2.28 に type A と type B の $n_x = 192$ における FO1 と UO1-4 デンドライト先端の軌跡を示している。UO1-3 デンドライト先端の軌跡は type A と type B で異なり、type B の UO デンドライトはより左側に進行できると考えられる。FO1 デンドライトの軌跡も type A と type B で異なる。y 方向の相互作用は、type A の face-to-face 相互作用の方が type B の space-to-face 相互作用よりも強いので、type A の FO1 デンドライトの方が type B の場合よりも左側に大きく移動する。一方で、FO1 の移動量が異なるにも関わらず、type A と type B の FO1 デンドライトは両方とも UO4 デンドライトによって淘汰された。これは、type B では厚み方向について space-to-face 相互作用が働いたことを意味している。さらに、図 2.25(f)の $n_x = 256$ の場合では、UO デンドライトが FO デンドライトの間を通り抜ける様子が見られた。この時、図 2.26(e)に示すように、FO1 デンドライトの先端位置は、z 方向位置をほとんど保ったまま右側に移動する。図 2.29 に $n_x = 256$, $\theta_{UO} = 5^\circ$, type B の場合の時刻(a) $3 \times 10^{6\text{th}}$ step と(b) $3.37 \times 10^{6\text{th}}$ step における上面図を示す。ここで、デンドライト形態($\phi = -0.9$ の等高面)と z 方向 880 番目の格子点を通る x-y 平面上の溶質濃度分布をそれぞれ示す。図 2.29(a)において、FO1 デンドライトの右側に太矢印で指し示す比較的溶質濃度の低い領域が存在する。この時、図 2.29(b)に細矢印で示すように、FO1 デンドライトは右側に動く。従って、 $n_x = 256$, type B の場合において異常淘汰は発生しない。図 2.26 において明らかなように、薄膜計算領域の厚みが一定以上広い場合、face-to-face 相互作用と space-to-face 相互作用とで FO と UO デンドライトの相互作用に違いが生じる。

(3) 大規模計算による複数デンドライトの相互作用評価

前述の収束粒界における理想的な 1 対 1 の FO と UO デンドライトの相互作用が生じる薄膜領域計算において、薄膜の厚みが小さい場合、FO と UO デンドライトの相互作用は face-to-face 相互作用の場合と space-to-face 相互作用の場合とでほとんど同じになることが明らかになった。一方で、薄膜厚みが増加すると、FO と UO デンドライトの相互作用はデンドライト配列に依存して徐々に変化し、薄膜厚さが臨界値に達すると space-to-face 相互作用の場合において、FO デンドライト間へ UO デンドライトが侵入した。ここで、複数のデンドライトが相互作用する 3 次元バルク領域において face-to-face 相互作用と space-to-face 相互作用が同時に生じる場合のデンドライト淘汰挙動の評価を行う。計算条件を図 2.22 と図 2.23(b)に示す。ここで、計算領域格子点数は $n_x \times n_y \times n_z = 768 \times 1536 \times 1536$ とし格子幅 $\Delta x = 0.75 \mu\text{m}$ を用いて 7×10^6 steps ($t = 187.5 \text{ s}$)の計算を実

施した．ここで，3種類の傾き角 $\theta_{\text{UO}} = 5^\circ, 10^\circ, 15^\circ$ について計算を行う．各計算は 368 GPU を用いて実施され，それぞれの計算に約 5.5 日を要した．図 2.30（俯瞰図）と図 2.31（上面図）に時刻(a) 0.05×10^6 th step (1.3 s), (b) 0.25×10^6 th step (6.7 s), (c) 10^6 th step (26.8 s), (d) 3×10^6 th step (80.4 s), (e) 7×10^6 th step (187.5 s)における計算結果を示す．図中では，図 2.24 および図 2.25 と同様に， $\phi = 0$ の固液界面を FO 粒について水色で，UO デンドライトについて黄色で示す．計算開始直後，まず，図 2.30(a)と図 2.31(a)に示すように固相が計算領域底面に濡れ広がる．その後，図 2.31(b)に示すように 2 つの粒が計算領域のほぼ中央で衝突し，直線状の粒界を形成する．この時，ランダムに配列するデンドライトが確認できる．ここで，UO デンドライトの傾き角は設定した θ_{UO} よりも小さかった．計算が進むにつれて，FO デンドライトと UO デンドライトの淘汰が生じ，デンドライトの配列は徐々に規則的に並んでいった．図 2.30(c)と図 2.31(c)に示すように，FO 粒では 1×10^6 th step 以降デンドライトが六角形配列を取る様子が見られた．また，UO 粒では，デンドライトは移動方向(y 方向)と側面方向(x 方向)に規則的に並んだ．図 2.31(e)に示すように，全ての θ_{UO} の場合において最終的に UO デンドライトは 3 本の線に沿うように並んだ．図 2.30(b)–2.30(e)に示すように，UO デンドライトが成長するにつれて UO デンドライトの傾き角も増加した．この時，全ての θ_{UO} について，WC モデルに反する普通ではない淘汰現象が観察された．また， θ_{UO} が小さいほど UO デンドライトが FO 粒に

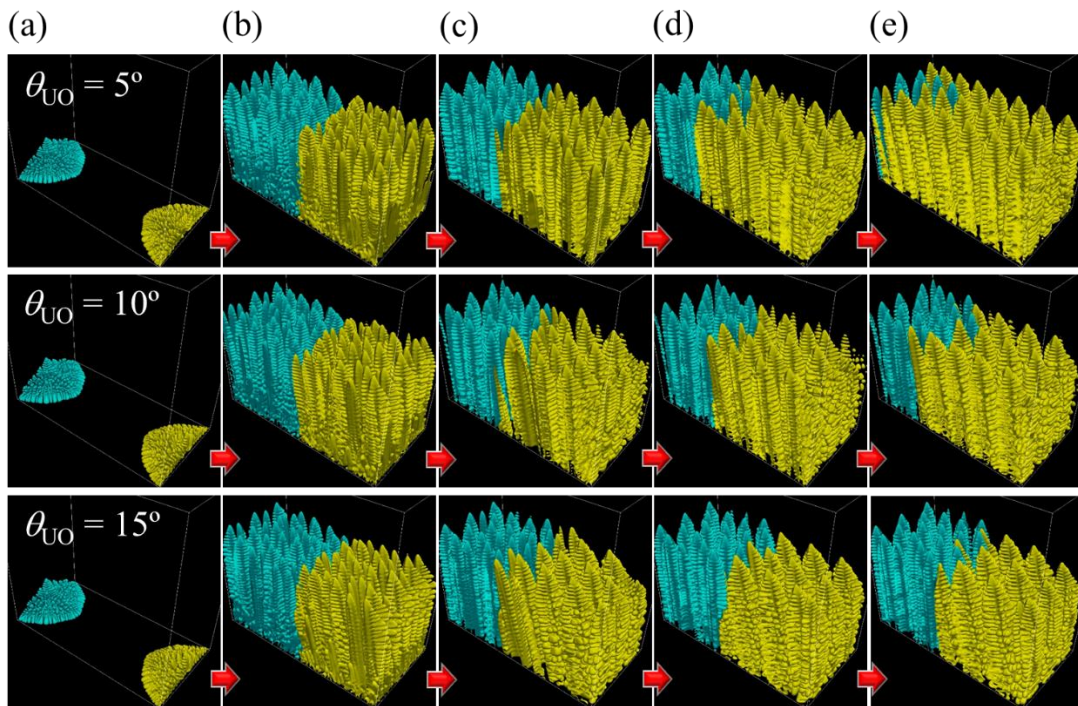


Fig.2.30 Time slices of large-scale simulations with $n_x \times n_y \times n_z = 768 \times 1536 \times 1536$: (a) 0.05×10^6 th step (1.3 s), (b) 0.25×10^6 th step (6.7 s), (c) 10^6 th step (26.8 s), (d) 3×10^6 th step (80.4 s), and (e) 7×10^6 th step (187.5 s).

深く侵入していく様子が確認できた．ここで，淘汰速度は粒界ごとに異なり，界面がジグザグ形状もしくは入り江形状になっている．図 2.31(e)において，ジグザグ粒界の深さは θ_{UO} が小さいほどより深くなる．また， $\theta_{UO} = 10^\circ$ と $\theta_{UO} = 15^\circ$ の計算において，粒界に位置する FO デンドライトの二次枝が UO 粒側に向かって成長し，図 2.31(b)に示す初期粒界位置よりも右側へと侵入している様子が確認できた．

図 2.32 は，図 2.30 と図 2.31 に示す大規模計算における時刻 0.22×10^6 step から 7×10^6 step までの FO と UO デンドライト先端位置の軌跡を示している．軌跡を示す線の色は時刻を示し， 0.22×10^6 step において青， 7×10^6 step において赤である．図中に示す白印は最終時刻 7×10^6 step におけるデンドライト先端位置を示している．終点に白印がない線は淘汰されたデンドライトの軌跡を示す．異なる θ_{UO} を用いた 3 種類の計算において，図 2.32 に示すように最終的に UO デンドライトが一直線に並ぶ 3 本の線が形成された．図 2.32 において，それらの 3 本の線を L1-L3 で示す．また，図 2.32(a)と図 2.32(b)に示す線 L4 と線 L5 は，最終時刻までに消えた UO デンドライトの並ぶ線である．さらに，粒界に位置する一部の FO デンドライトの移動方向を白矢印で示している．L4 と

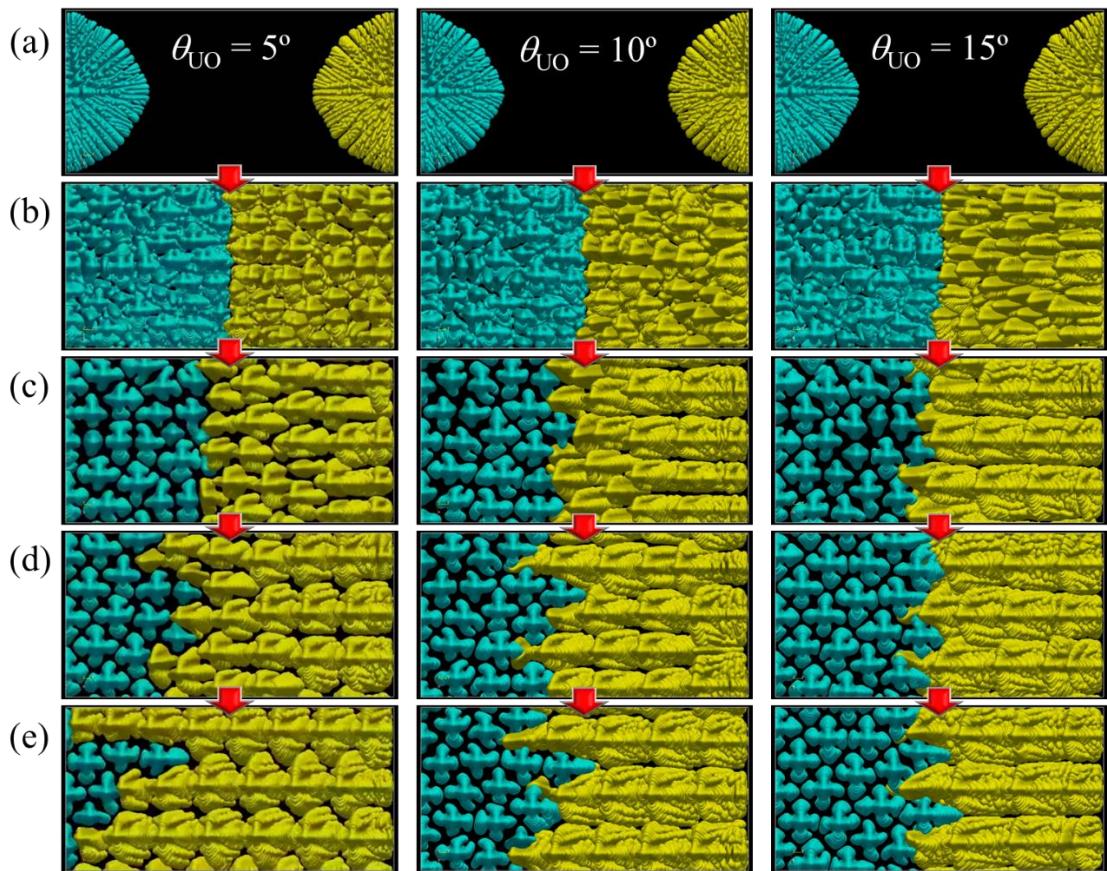


Fig.2.31 Top views of Fig. 2.30: (a) 0.05×10^6 step (1.3 s), (b) 0.25×10^6 step (6.7 s), (c) 10^6 step (26.8 s), (d) 3×10^6 step (80.4 s), and (e) 7×10^6 step (187.5 s).

L5の線の淘汰は、線L1-L3右端におけるUOデンドライトの分岐によって起こる。この淘汰は、 $\theta_{UO} = 5^\circ$ の場合、L4については図2.30(c)、L5については図2.31(d)において確認できる。また、 $\theta_{UO} = 10^\circ$ の場合、L4の淘汰が図2.30(d)において確認できる。 $\theta_{UO} = 5^\circ$ において、L4とL5が淘汰されると、L2とL3がそれぞれ上側および下側にそれぞれ移動して、UOデンドライトのx方向の間隔が均一になるように変化した。 $\theta_{UO} = 10^\circ$ において、L4が淘汰された後、L2とL3は下側および上側にそれぞれ移動した。また、

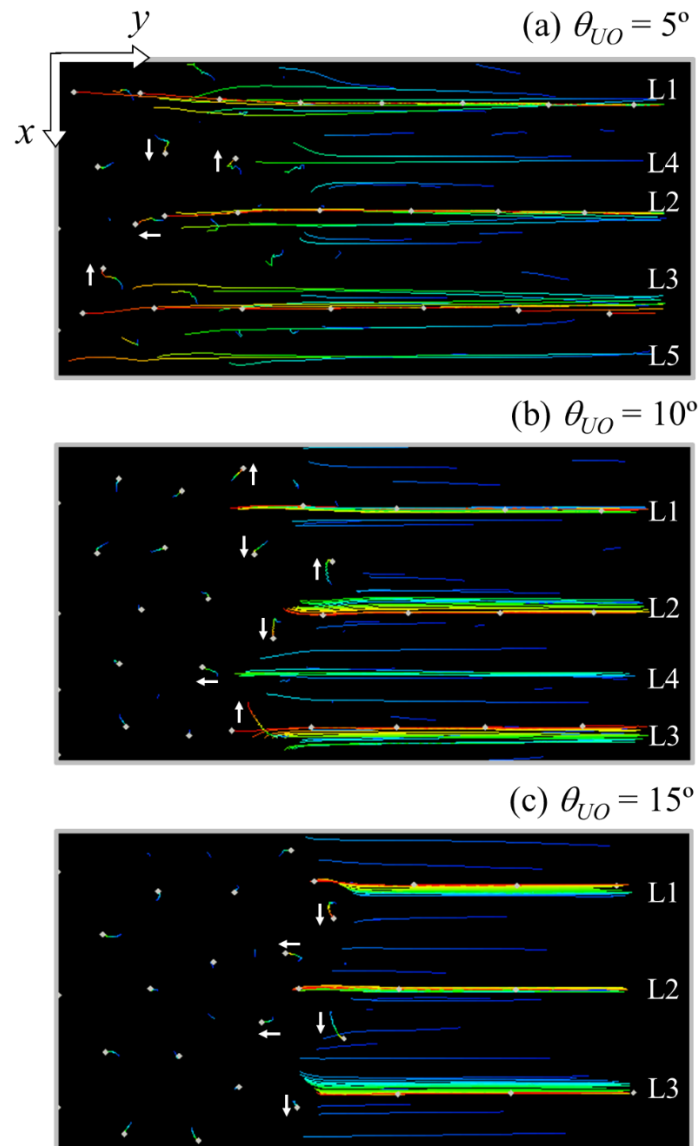


Fig.2.32 Top views of tip trajectories in the large-scale simulations. The colors indicate time from the $0.22 \times 10^{6\text{th}}$ step (blue) to the $7 \times 10^{6\text{th}}$ step (red). The white marks denote the tip positions in the final ($7 \times 10^{6\text{th}}$) steps.

$\theta_{UO} = 15^\circ$ においても UO デンドライトの線の x 方向への移動が見られた．さらに， $\theta_{UO} = 5^\circ$ において UO デンドライトの線 L1-L3 は FO デンドライトを避けるようにわずかに湾曲した．ここで， θ_{UO} が大きいほど，UO デンドライトの線は直線になった．これは， θ_{UO} が大きいほど UO デンドライトの移動速度が上昇し，FO デンドライトとの相互作用時間が短くなるためである．一方，UO デンドライトは FO デンドライトの間に侵入しようとするため，UO デンドライトの軌跡は淘汰間際においてわずかに湾曲する．粒界に位置する FO デンドライトは図 2.32 中において白矢印で図示するように UO デンドライトを避ける方向へと移動した．FO デンドライトを避けるための UO デンドライト先端の軌跡の湾曲と，UO デンドライトを避けるための FO デンドライトの x 方向への移動は，両方とも FO デンドライトと UO デンドライトが space-to-face 相互作用するようにデンドライトを再配列している．実際のバルク内部における複数デンドライトの相互作用時には，完全な face-to-face 相互作用はほとんど生じず，相互作用する UO デンドライトと FO デンドライトの間にはある程度の位置のずれが存在すると考えられる．そのため，ここで示したようなデンドライトの再配列が生じ，UO デンドライトの FO 粒への侵入が生じると考えられる．図 2.32(a)に示す L2 において，face-to-face 相互作用が確認できるが，その位置においては普通ではない淘汰が遅れている．この粒界位置ごとの相互作用の違いがジグザグ形状の粒界を形成する理由である．

2.4.3 多結晶

(1) 計算条件

一方向凝固中の多結晶競合成長計算を行う．図 2.33 に計算条件を示す．まず， $768 \times 768 \times 1149.75 \mu\text{m}^3$ の計算領域を設定する．温度勾配は z 方向に設定し，デンドライト形態からセル形態までの成長挙動を評価するために，5 種類の温度勾配 $G = 10, 20, 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ について計算を行う．ここで，引拔速度は $V_p = 100 \mu\text{m/s}$ に固定する．計算開始時に，半径 $3\Delta x$ のランダムな結晶方位を持つ 64 個の固相核を計算領域底面($z = 0$)のランダムな位置に配置する．3 種類の初期核配置の組み合わせ(Case 1-3)を各 5 種類の G の値の計算に用いる．そのため，計 15 種類の計算を実施する．固相核の $\langle 100 \rangle$ 方向と z 軸とのなす角度 θ_z ($0^\circ < \theta_z < 54.74^\circ$) の組み合わせについて，64 個の固相核 3 種類(Case 1-3)分を図 2.34 に示す．図中において，横軸は θ_z について昇順に並べた時の固相核の順番を番号として示している．計算には Al-3wt%Cu の材料物性を用いる．物性値は第 2 章 4 節 1 項の表 2.1 に示した値と同様の値を用いる．また，その他の計算パラメータとして，格子幅 $\Delta x = 0.75 \mu\text{m}$ ，界面幅 $W_0 = \Delta x/0.8$ ，時間増分 $\Delta t = 2.6786 \times 10^{-5} \text{ s}$ を用いた．計算領域境界における ϕ と u の境界条件について， x 方向と y 方向には周期境界条件， z 方向には零ノイマン条件をそれぞれ適用した．計算開始時の計算領域底面の温度を，無次元化飽和度 $u = -0.3$ に対応する温度 $T_0 = 922.39 \text{ K}$ と設定する．

多結晶一方向凝固計算は，東京工業大学の GPU スパコン TSUBAME2.5 を用いた複数

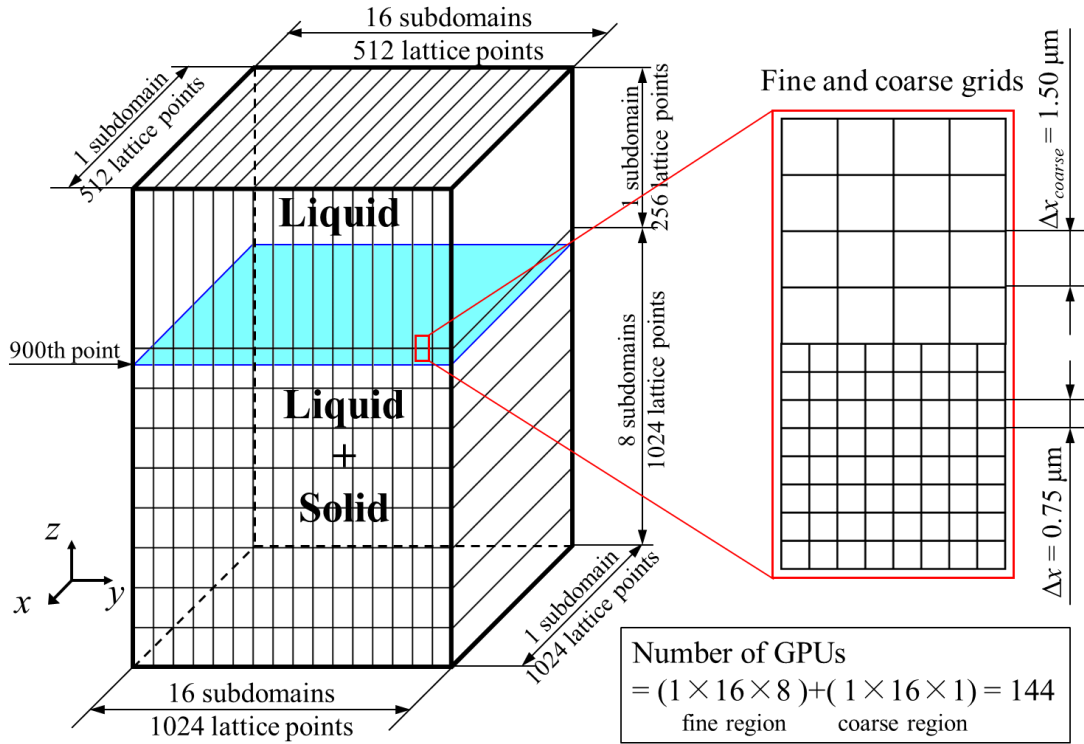


Fig.2.33 Computational domain subdivision (left) for parallel computation and grid division (right). Each subdomain is assigned to one GPU. To reduce the computational cost, coarse grids, $\Delta x_{\text{coarse}} = 2\Delta x$, are used in the liquid region. The dendrite/cell tip positions are maintained below the blue plane at the 900th lattice point position.

GPU 並列計算によって実施する．図 2.33 に示すように，計算コスト削減のため，液相領域の計算には $\Delta x_{\text{coarse}} = \Delta y_{\text{coarse}} = \Delta z_{\text{coarse}} = 1.5 \mu\text{m}$ の粗い計算格子を用いる．これは固液共存領域を計算するための格子幅 $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 0.75 \mu\text{m}$ の 2 倍である．計算格子は $1,024 \times 1,024 \times 1,024$ の細かい格子と $512 \times 512 \times 256$ の粗い格子で構成される．それらの格子は $1 \times 16 \times 8$ と $1 \times 16 \times 1$ のサブ領域に分割し，各分割領域の計算にそれぞれ GPU を 1 基割り当てる．そのため，計算には 144 GPU を用いた．細かい格子と粗い格子の境界部分では 1 次線形補間を用いてデータの補間を行う．計算中は，計算領域移動法により， 1×10^6 step まではデンドライト/セル先端位置が z 方向の 900 番目の格子点位置を超えないように計算領域を z 方向へ移動させる．また， 1×10^6 step 以降は $\Delta z / (V_p \Delta t)$ の周期で計算領域を 1 格子分 z 方向へ移動させる．計算は 5×10^6 step ($t = 133.9 \text{ s}$) まで行う．これは引抜距離 13.4 mm に対応する．各計算には約 5.2 日を要した．

(2) 計算結果

図 2.35 と図 2.36 に固液界面 ($\phi = 0$) の時間変化の俯瞰図および上面図をそれぞれ示す．ここで，色はデンドライトの傾き角 θ_z を示している．図 2.35 では，図 2.33 に示す細か

い格子領域部分のみを示している．図 2.35 と図 2.36 より， $G = 10, 20, 50 \text{ K/mm}$ においてデンドライト形態が確認できた．一方， $G = 200 \text{ K/mm}$ ではセル形態が確認できた． $G = 100 \text{ K/mm}$ では，セル形態からデンドライト形態へ遷移する過程のような構造が得られた．図 2.36 中において時間経過に伴い赤色の領域が増えることから，小さい θ_z の FO 粒が優先的に成長することが確認できた．また， $G = 10, 20 \text{ K/mm}$ において，比較的傾き角 θ_z の大きい UO 粒(緑-黄)が最終時刻 $5 \times 10^{6\text{th}}$ step まで生き残る様子も確認できた．

図 2.37 に全 15 種類の計算において生き残った粒の違いを示す．図 2.37 に示す灰色の領域は，計算開始時点において対応する θ_z を持つ粒が配置されなかったことを示している．図中のバーの右端の位置は，淘汰された時刻を示す．ここで， $G = 10, 20, 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ の計算について一次枝先端位置がそれぞれ z 方向 850, 860, 880, 890, 890 番目の格子点位置を超えているデンドライト/セルを生存中のデンドライト/セルと見なした．各粒を構成するデンドライト/セルが上記の基準に基づいて 1 本以上生存している場合，その粒が生存していると判断される．生存中の粒のカウントは，デンドライト/セルの先端が z 方向 900 番目の格子点位置の高さに初めて達した時刻から開始される．図 2.37 の各グラフの左上端および右上端に示す数はそれぞれ時刻 $0.3 \times 10^{6\text{th}}$ step ($t = 8.04 \text{ s}$)と $5 \times 10^{6\text{th}}$ step ($t = 133.93 \text{ s}$)において生き残った粒の数である．図 2.37 に示すように， $0.3 \times 10^{6\text{th}}$ step において生き残った粒の割合は初期核が 64 個なのに対して $1/5$ (Case 3, $G = 100 \text{ K/mm}$ において粒 12 個生存)から $1/3$ (Case 1, $G = 200 \text{ K/mm}$ において粒 21 個生存)程度であった．この時刻より前に，いくつかの比較的傾き角 θ_z の大きな UO 粒が淘汰されている．小さい θ_z を持つ FO 粒はこの時刻以降も長時間成長し続け，最終的に時刻 $5 \times 10^{6\text{th}}$ step ($t = 133.93 \text{ s}$)において 2 個(Case 3, $G = 50, 100 \text{ K/mm}$)から 8 個(Case 1, $G = 200 \text{ K/mm}$)

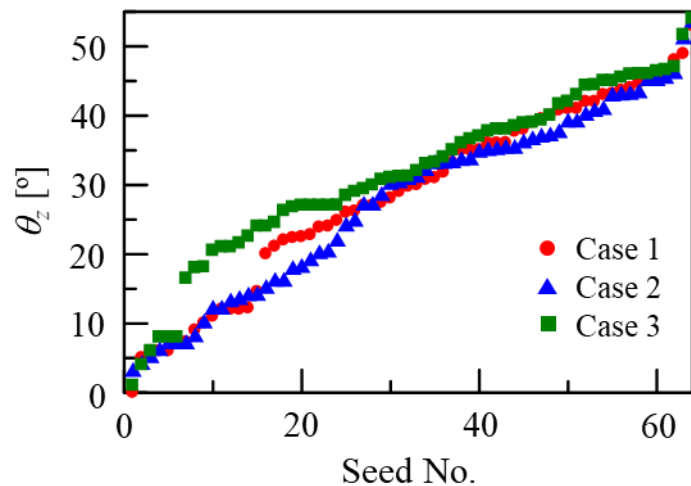


Fig.2.34 Angles, θ_z , between the preferred growth direction $\langle 100 \rangle$ and the z -axis for the three sets of 64 seeds. The seeds are numbered in increasing order of θ_z .

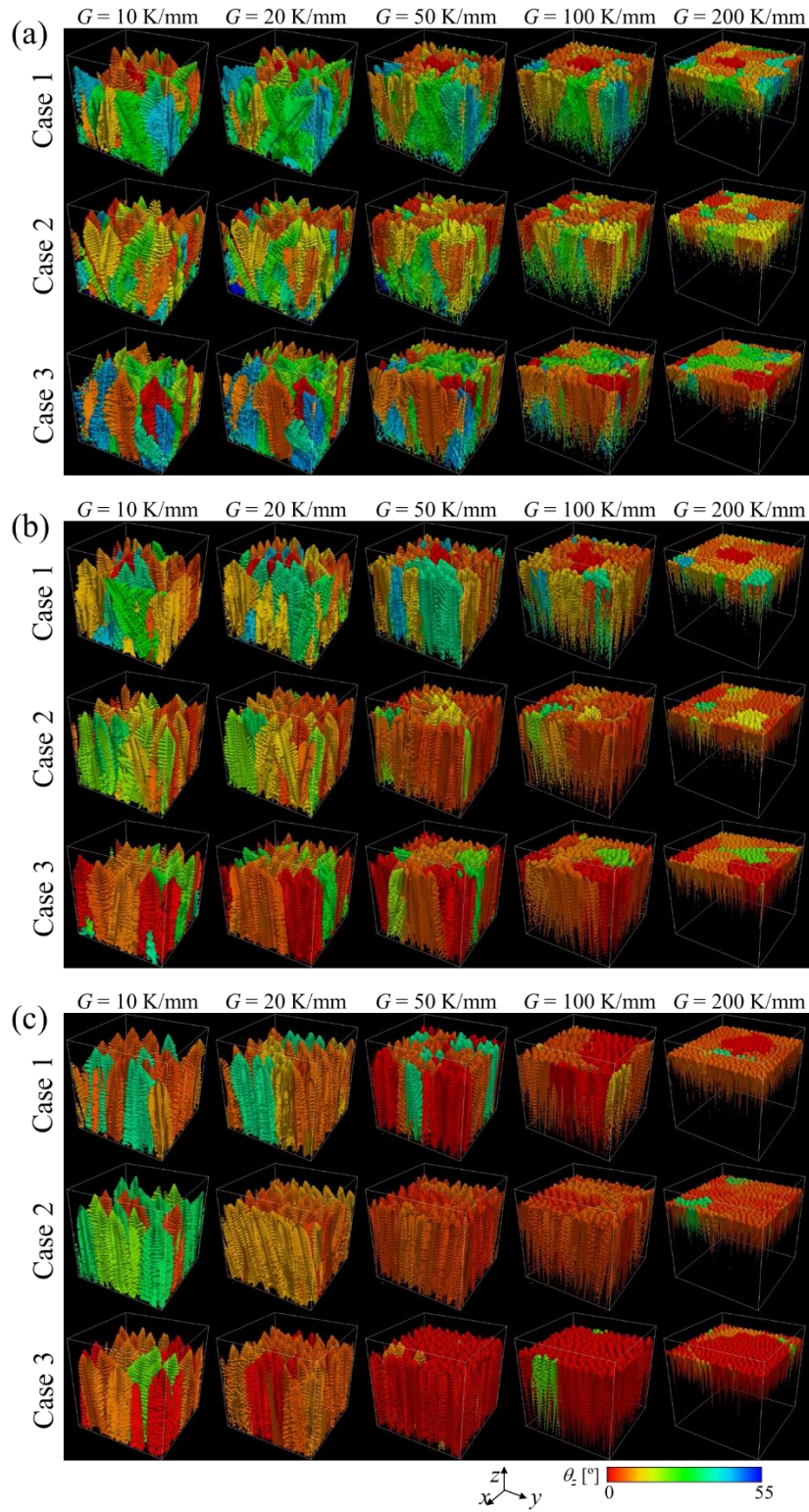


Fig.2.35 Time slices of bird's-eye views of the solid-liquid interface (isosurface at $\phi = 0$) at (a) 3×10^5 step (8.0 s), (b) 1×10^6 step (26.8 s), and (c) 5×10^6 step (133.9 s). The colors indicate the value of θ_z .

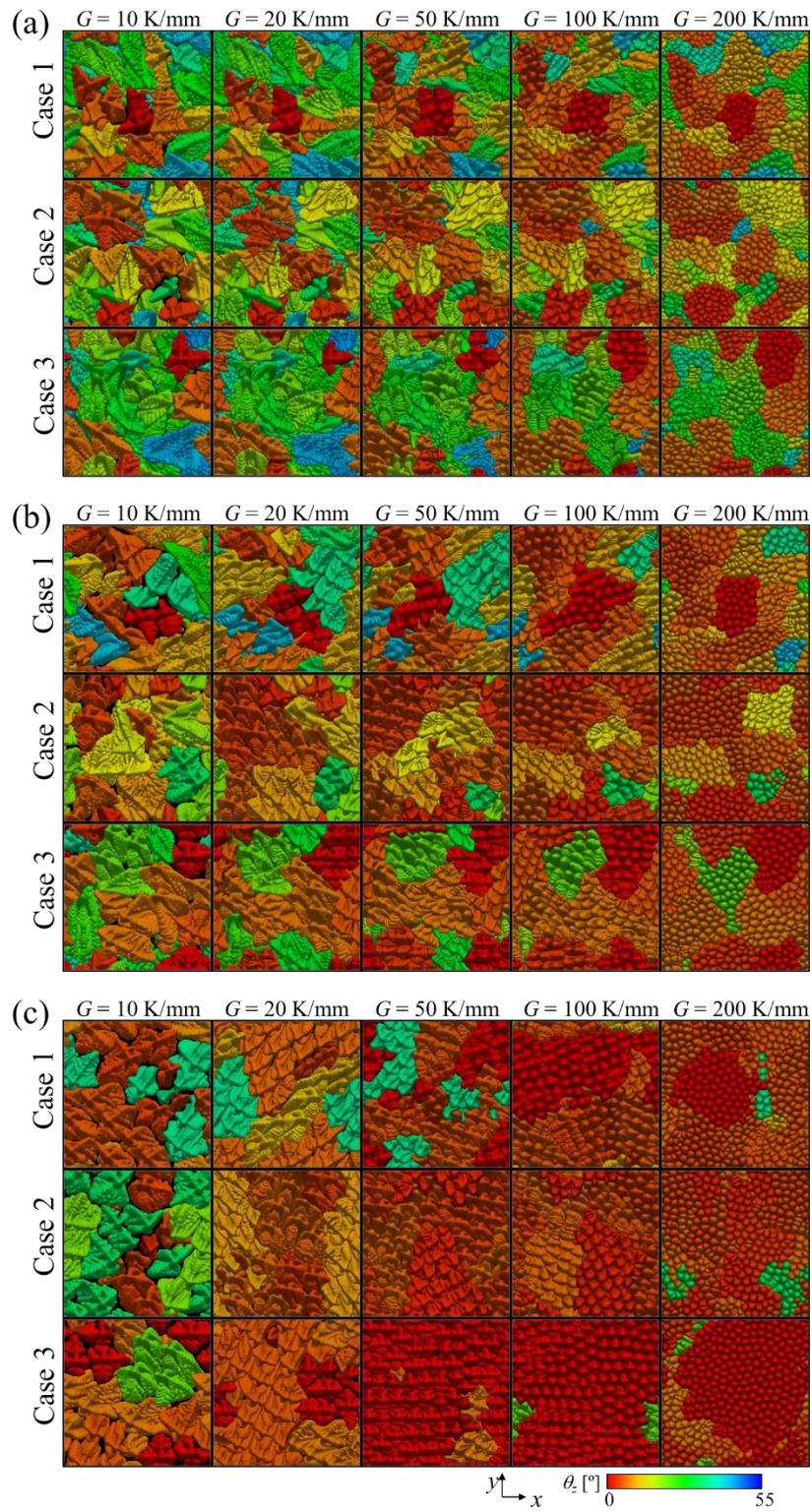


Fig.2.36 Time slices of top views of the solid-liquid interface (isosurface at $\phi = 0$) at (a) 3×10^5 step (8.0 s), (b) 1×10^6 step (26.8 s), and (c) 5×10^6 step (133.9 s). The colors indicate the value of θ_z .

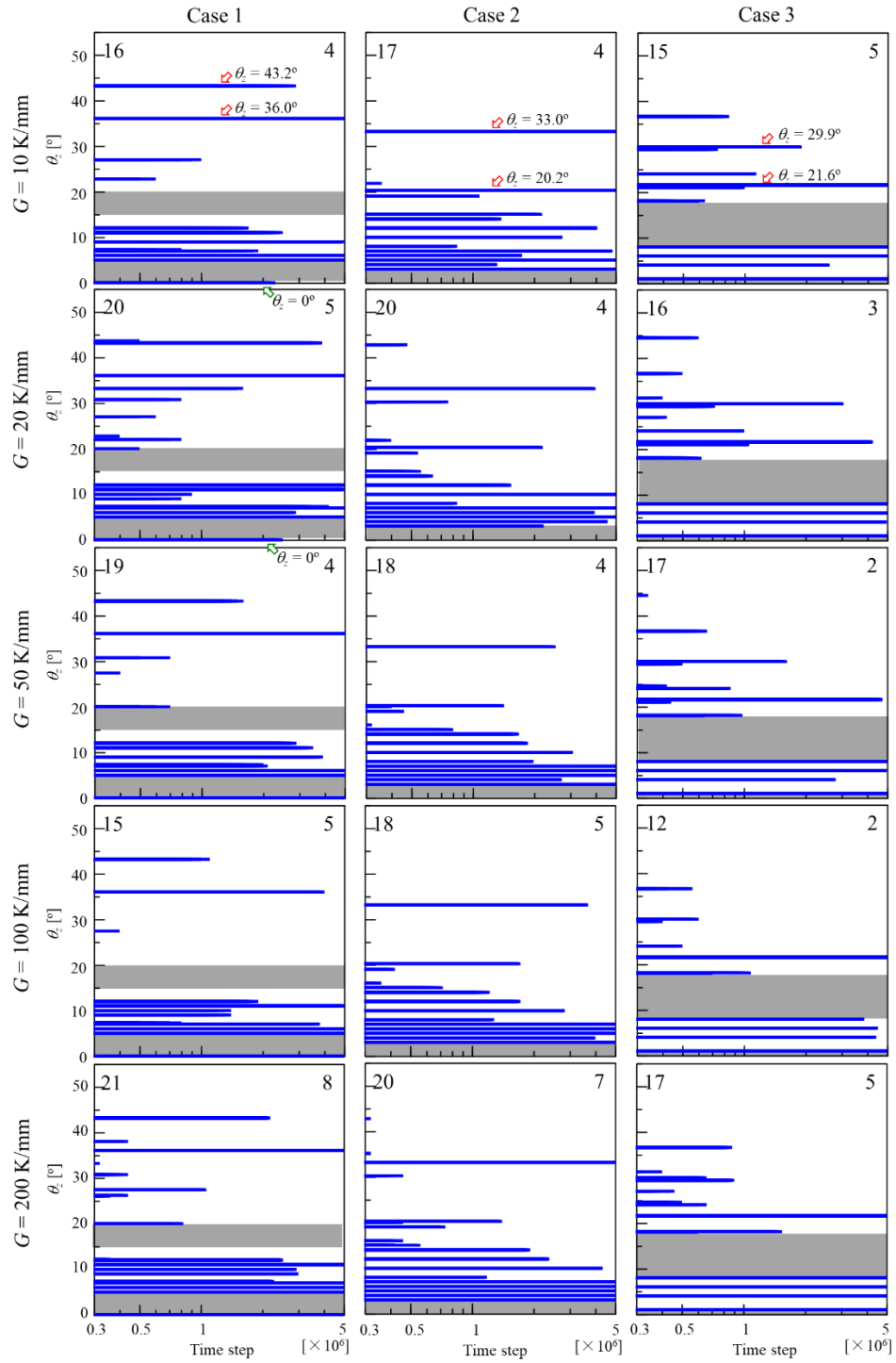


Fig.2.37 Changes in surviving grains during 15 simulations. The right end of each bar indicates the time at which a grain is overgrown. Note that there are some grains with the same value of θ_z . There are no grains from the beginning of the simulations in the gray regions. The numbers in upper left and upper right corners in each figure indicate the number of remaining grains at 0.3×10^6 th step (8.04 s) and 5×10^6 th step (133.93 s), respectively.

までの粒が残った．最終時刻では，ごく僅かに UO 粒が生き残ったものの，生き残った粒のほとんどが $\theta_z < 10^\circ$ の FO 粒であった．

図 2.38 に，各時刻において観測された生存中の粒の数を，デンドライト先端位置から初期計算領域底面位置(チル表面)までの z 方向距離の関数として示す．図 2.38 より，生存中の粒の数は， $G = 10, 20, 50 \text{ K/mm}$ において一部瞬間的に増加する様子が見られるものの，基本的にチル表面からの距離が増えるほど単調に減少した．この一時的な粒子数の増加は，FO デンドライトの間を UO デンドライトが通り抜ける際にデンドライト先端位置が z 方向に振動することで引き起こされた．

(3) 3次元多結晶淘汰挙動

本研究において重要な点は，3次元柱状多結晶の競合成長計算の結果が，FO 粒が UO 粒を淘汰して生き残るという WC モデル[128]に基づく予測と良好に一致している点である．2次元系を用いて実施された柱状多結晶計算[82]では，WC モデルと異なり，UO 粒による FO 粒の淘汰が頻繁に確認された．2次元計算において各粒は左右に隣接する2個の粒からのみ相互作用を受ける．それゆえに，文献[82]に示すように，隣接する左右の粒の成長方向が中央の粒から離れていく方向を向いている場合，その粒は例え傾き

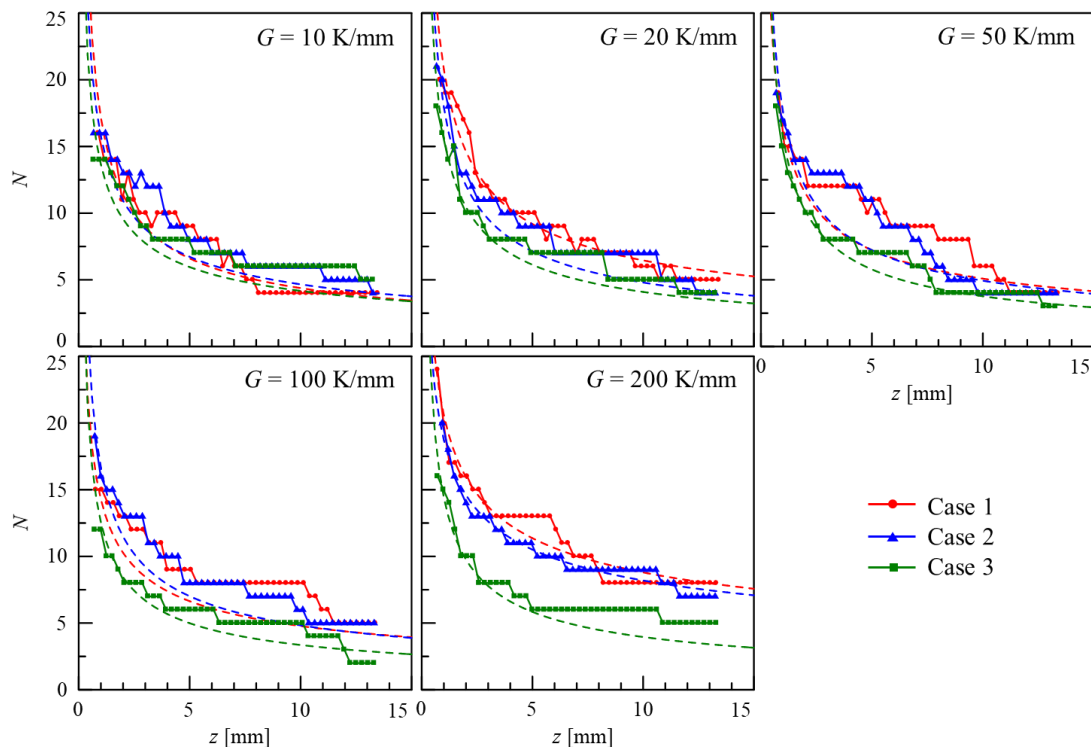


Fig.2.38 Changes in the number of surviving grains, N , for all 15 simulations. The grain counting starts when the first tip reaches grid point 900 in the z -direction. The dashed lines represent the outcome of fitting obtained using Eq. (2.28).

角の大きな UO デンドライトであっても淘汰されずに成長し続ける。しかしながら、3次元計算においては、各粒の周囲にはいくつもの粒が存在し、それらが互いに作用する。図 2.39 に一方向凝固中の複数粒を上から見た場合の粒界の相互作用の概略図を示している。なお、粒配列は六角形配列が支配的であるが、概略図中においては簡単のため4個の粒に四方を囲まれた粒を示す。図中の矢印は粒の進行方向もしくは分岐方向を示している。図 2.39(a)に示す状況では、例えば粒 A が傾き角の小さな FO 粒であっても、隣接粒によって容易に淘汰される。一方で、図 2.39(b)に示す状況では、例えば粒 B が傾き角の大きな UO 粒であっても淘汰されずに成長し続ける。この場合、粒 A と粒 B がそれぞれ FO 粒および UO 粒の場合に WC モデルに反した淘汰が発生する。しかしながら、図 2.39(a)や図 2.39(b)に示すような粒配置が生じる可能性はかなり低く、基本的には図 2.39(c)に示すような、一部の隣接粒は粒 C に向かって成長し、その他の隣接粒が粒 C から離れる方向に成長するような条件が最も現れやすい。図 2.39(c)に示すような条件において、粒 C が FO 粒であり一部の隣接粒が粒 C に向かって成長するとしても、粒 C はそれ以外の粒 C から離れる方向に成長する隣接粒へ向かって成長する。この場合、粒 C は生き残る。対照的に、粒 C が UO 粒であり一部の隣接粒が粒 C から離れる方向に成長するような条件であっても、粒 C はそれ以外の粒 C に向かって成長する隣接粒によって淘汰される。それゆえに、図 2.39(c)の場合において異常淘汰は起こらない。また、図 2.39(a)と図 2.39(b)に示すような状況が生じたとしても、その状況は長く続かないと考えられる。なぜなら、周囲の隣接粒もまた、その他の周囲の粒から影響を受けて粒配置が時間変化するからである。以上が3次元多結晶凝固中に観測された柱状粒の淘汰挙動が2次元計算の場合よりも WC モデルにおいて予想される淘汰挙動とよく一致した

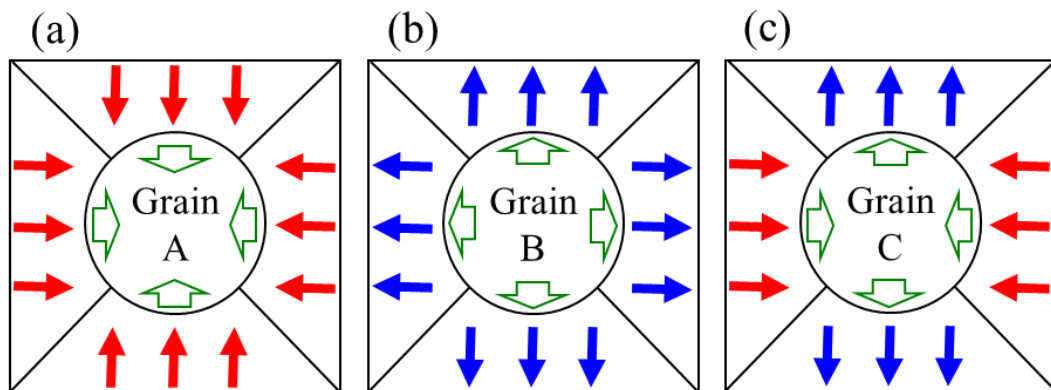


Fig.2.39 Schematic illustration of a grain interacting with neighboring grains. The arrows indicate the migration or branching direction of grains. (a) All neighboring grains migrate toward grain A, (b) all neighboring grains grow away from grain B, and (c) some neighboring grains grow toward the grain C and others grow away from grain C. If grains A and B are FO and UO grains, respectively, the unusual overgrowth would occur in cases (a) and (b).

理由である。言い換えれば、2次元系や二結晶において見られる粒の淘汰プロセスは極めて限定的な条件において生じるものであると言える。

(4) WC モデルに反した淘汰挙動

図 2.35-2.37 において、一部の UO 粒が長時間成長し続けている。その具体例を図 2.37 に白抜赤矢印で示す。また、一部の FO デンドライトの淘汰が確認されている。図 2.37 において白抜緑矢印で示すように、Case 1 の $G = 10, 20 \text{ K/mm}$ において、 $\theta_z = 0^\circ$ の FO デンドライトが淘汰されている。これらは WC モデルに反した普通ではない淘汰である。この淘汰の原因を調査するために、第 2 章 4 節 1 項で用いたボロノイ分割を今回の計算で得られたデンドライト/セル先端位置に対して行い、 z 方向に垂直な平面上において各粒が占める面積を算出した。図 2.40 は、図 2.36 に対応するボロノイ分割の結果を示す。ここで、白印は一次枝先端位置を示し、黒線は各デンドライト/セルに対応する多面体の辺を示している。また、色で傾き角 θ_z を示している。図 2.40 より各粒の面積変化の評価が可能になった。

図 2.41 に 4 個の特徴的な UO 粒および FO 粒の面積 A_g の時間変化を、計算領域面積 $A_{all} = 768 \times 768 \text{ } \mu\text{m}^2$ の比 A_g/A_{all} としてそれぞれ示す。図 2.41(a) と図 2.41(b) は UO 粒を示す。図 2.40(c) における緑の粒と対応する粒 (Case 1, $\theta_z = 36^\circ$) を図 2.41(a) に、図 2.40(c) における黄緑の粒と対応する粒 (Case 3, $\theta_z = 21.6^\circ$) を図 2.41(b) にそれぞれ示している。図 2.41(a) と図 2.41(b) において、 $G = 10, 20, 50 \text{ K/mm}$ の場合のデンドライト構造における面積は、時間経過に伴い振動や急激な増減を示した。これは、粒内に含まれるデンドライトの数が少ないこと、淘汰や新しいデンドライトの生成が頻繁に行われることに起因している。デンドライト構造の場合、一次枝間隔が広がるため、大きな傾き角を持つ UO デンドライトが他のデンドライト粒の間に侵入していく。そのため、セル形態よりもデンドライト形態の方が、大きな傾き角を持つ UO 粒がより長期間成長を続けられる。この傾向は、図 2.37 において赤矢印で示すデンドライト (Case 1, $\theta_z = 43.2^\circ$) においても見られる。このデンドライトは図 2.40(b) の水色の粒に対応する。また、図 2.40(c) の Case 1 と Case 2 の $G = 10 \text{ K/mm}$ に示すように、UO デンドライト粒が複数の小さい粒に分裂する様子も見られた。対照的に、 $G = 200 \text{ K/mm}$ におけるセル形態の UO 粒は図 2.41(a) と図 2.41(b) に示すように滑らかな面積変化を示した。セル形態の UO 粒はまとまって移動しており、デンドライト形態の UO 粒とは異なり分裂しにくい傾向が確認できた。最終的に、デンドライト形態の UO 粒はセル形態の UO 粒よりも長期間成長し続けると結論付けられる。

一方で、FO 粒については、図 2.41(c) と図 2.41(d) に示すように UO 粒とは異なる傾向を示した。それらの図中において、 $G = 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ の粒の面積は時間経過に伴い単調に増加しているが、デンドライト形態を取る $G = 10, 20 \text{ K/mm}$ の粒の面積は増加しにくい様子が見られた。デンドライトの数は分岐によって増えるが、分岐するためには

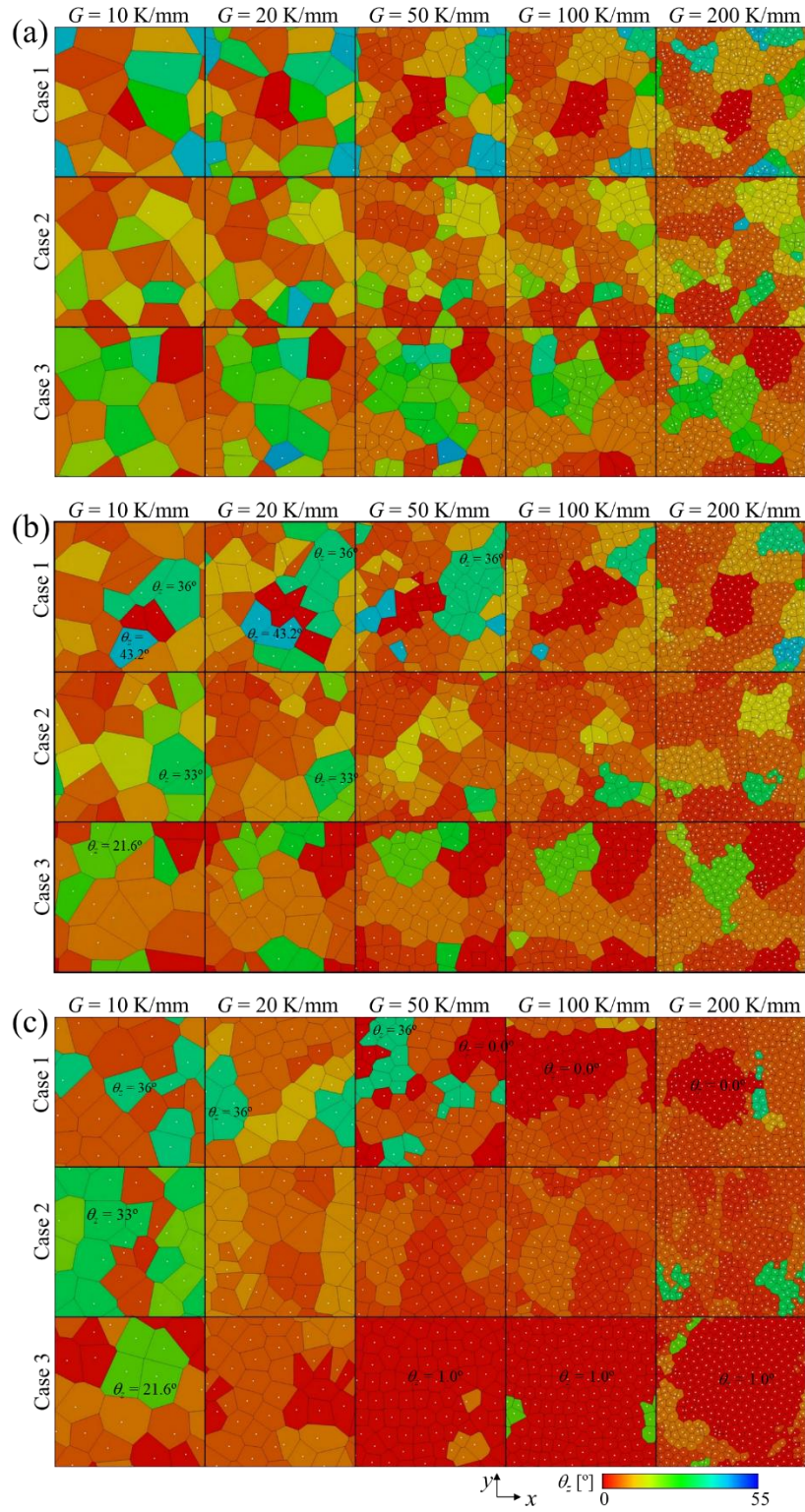


Fig.2.40 Voronoi tessellation for the dendrite/cell tip positions corresponding to Fig. 2.36. White marks indicate the tip positions on the x - y surface, the black lines are the individual dendrite/cell boundaries and the color indicates the inclination angle θ_z .

デンドライト一次枝の周辺に十分な広さの空間を必要とする．対照的に，セル形態の粒は二次枝が曲がって一次枝になることでセルの数を増やすことができるため[81-82]，新たなセルの生成にデンドライトほど広い空間を要しない．図 2.41(c)において， $G = 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ の場合の面積増加は $3 \times 10^{6\text{th}}$ step 付近で加速している．これは，周囲の粒から受ける相互作用の形態が変化したためである．図 2.41(d)に示す $G = 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ の FO 粒は，図 2.40(c)において赤い領域で示すように，最終的に計算領域のほぼ全域を覆っている．図 2.41(c)に示す $G = 10, 20 \text{ K/mm}$ のデンドライト形態の FO 粒は普通ではない淘汰の発生条件に従って淘汰されている．このような図 2.39(a)に示す淘汰条件を満たす FO 粒周辺の粒配置は，デンドライトの数が少なくなることによって生じた．

(5) 幾何学的淘汰との比較

Kolmogorov は底面のランダムな位置に生成したランダムな方位を持つ核が幾何学的駆動力による淘汰を伴いつつ成長した時に得られる柱状組織について，底面からの成長距離と生存している粒の数の関係式を導出した[175]．関係式は次式で与えられる．

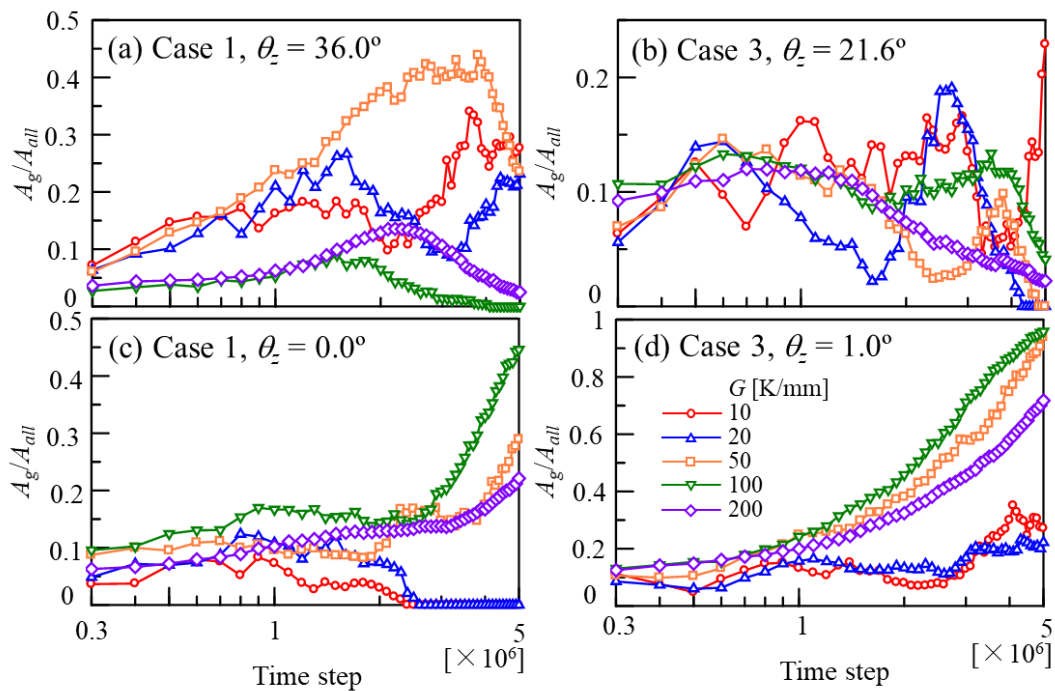


Fig.2.41 Area changes in four characteristic grains: two UO grains with (a) $\theta_z = 36.0^\circ$ in Case 1 and (b) $\theta_z = 21.6^\circ$ in Case 3, and two FO grains with (c) $\theta_z = 0.0^\circ$ in Case 1 and (d) $\theta_z = 1.0^\circ$ in Case 3. The areas are computed using the Voronoi tessellation results shown in Fig. 2.40. A_g and A_{all} indicate the grain area and computational domain area ($768 \times 768 \mu\text{m}^2$), respectively.

$$N(z, \rho) = \frac{c}{\sqrt{\rho} z^n} \quad (2.28)$$

ここで、 N は生存している結晶の数、 z は底面からの距離、 ρ は初期の粒の数密度、 c は定数、 n は指数であり、2次元の場合 $n = 0.5$ 、3次元の場合 $n = 1$ である。図 2.38 中の破線は式(2.28)を $N(z, \rho) = Cz^{-n}$ の形式として導出したフィッティング曲線である。図に示すように、粒数がかなり少ない場合においても、計算結果とフィッティング曲線が良好に一致している。表 2.3 にフィッティングに用いた指数 n の値を示す。デンドライト形態を取る条件($G = 10, 20, 50 \text{ K/mm}$)において、 n は約 0.55 となった。さらに、 n の値は温度勾配の増加に伴って $G = 200 \text{ K/mm}$ に達するまで徐々に減少した。これらの n の値は、3次元における理論値 $n = 1$ と比べてかなり小さい。これは、二元合金の一方向凝固において発生する粒の淘汰メカニズムが、幾何学的駆動力のみによって生じる淘汰メカニズムからの乖離が大きいことを意味している。ZnO のナノワイヤ配列において、実験値が $n = 0.8$ となることが報告されている[176]。しかしながら、ZnO ナノワイヤの異方性は合金凝固過程において観察される異方性よりも大きく、柱状構造はより線状である。二元合金の一方向凝固の場合、粒界におけるデンドライト/セルの相互作用は、2つの固体の直接接触ではなく、デンドライト/セル先端前方の溶質拡散層の相互作用によって引き起こされ、収束粒界において普通ではない淘汰を引き起こす[79-81, 135]。さらに、発散粒界の境界は、粒界における分岐によって波状になる[81-82, 177]。このような現象は、純粋な幾何学的駆動力のみによる粒淘汰が起こる異方性の高い構造においては見られず[176, 178]、粒の数の減少を遅らせる要因となる。これらの点を考慮すると、本計算より導出された低い n の値は妥当であると考えられる。さらに、本研究において実施された計算において、生き残った粒の数は比較的少なく、周期境界条件が競合成長に影響を与えている。より定量的に n の値を推定するためには、計算の更なる大規模化が必要である。

Table 2.3 Fitted exponents n in Eq. (2.28).

G [K/mm]	10	20	50	100	200
Case 1	0.593	0.508	0.506	0.475	0.369
Case 2	0.529	0.573	0.550	0.538	0.359
Case 3	0.515	0.583	0.618	0.573	0.561
Average	0.545	0.554	0.558	0.529	0.430

2.5 結言

本章では、一方向凝固過程における複数柱状デンドライト競合成長の3次元評価を数値計算的に可能とするため、計算領域移動法を実装した二元合金一方向凝固のための定量的フェーズフィールドモデルの複数GPU並列3次元フェーズフィールド計算コードを開発した。また、開発手法の並列計算性能評価を行い、複数GPU並列計算の適用により、良好なスケーリングが得られることを示した。また、開発手法を用いた大規模な3次元一方向凝固計算によって3次元バルク材料内における柱状デンドライトの成長挙動評価を行った。

まず、二元合金単結晶の一方向凝固中の温度勾配方向に垂直な平面上における一次枝配列の評価を、大規模フェーズフィールド計算により実施した。一次枝配列はボロノイ分割を用いて評価し、デンドライト組織とセル組織の両方で六角形配列が支配的であること、六角形配列の周辺に典型的な五角形・七角形欠陥が見られることを明らかにした。また、全多面体中の六角形の数の割合および五角形・七角形欠陥はそれぞれ時間経過に伴い増加および減少した。この挙動は、一次枝の数が一定になった後も続いた。さらに、セルーデンドライト遷移過程近傍のデンドライト形態において、一次枝が最も規則的に配列する様子が観察された。また、一次枝間隔はドロネー三角形分割を用いて評価した。その結果、一方向凝固中に一次枝間隔を均一にするように一次枝先端が移動する様子が確認できた。

次に、二元合金二結晶の収束粒界における3次元デンドライト競合成長挙動の評価を行った。まず、薄膜領域を用いた計算を行い、薄膜の厚みやUOデンドライトの傾き角、デンドライトの配列がデンドライト競合成長に与える影響の評価を行った。次に、収束粒界において複数のデンドライトが相互作用する現実的な凝固条件を模した大規模計算を行った。その結果、WCモデルに反した普通ではない淘汰が薄膜領域だけでなくバルク領域においても生じることを明らかにした。また、普通ではない淘汰は薄膜厚さが薄くUOデンドライトの傾き角が小さいほど発生しやすくなることを明らかにした。薄膜領域厚みが薄い場合には、収束粒界におけるFOデンドライトとUOデンドライトの相互作用はデンドライトの配置に影響を受けないことが分かった。一方で、薄膜領域厚みが増加するにつれて、相互作用がデンドライトの配列に影響を受ける様子が確認できた。この時、space-to-face相互作用の場合、FOデンドライト間隔が一定値を超えると、UOデンドライトがFOデンドライトの間に侵入する様子が見られた。複数のデンドライトの相互作用を取り扱った大規模計算では、ジグザグ形状の粒界が形成されることを確認した。ジグザグ粒界はUO粒の傾き角が小さいほどFO粒側へ進行した。また、一方向凝固中にFOとUOデンドライトがspace-to-face配列になるように再配列することが分かった。

最後に、多結晶二元合金一方向凝固の3次元大規模フェーズフィールド計算を実施し、複数の柱状粒の競合成長を系統的に評価した。ここで、計算コストをさらに削減するために、液相領域に粗い格子を、固液共存領域に細かい数値格子を用いる簡易な解適合格子法を実装した。多結晶柱状粒の3次元競合成長計算において、概ねWCモデルに従う結果が得ら

れた。また、局所的に WC モデルに反して UO 粒が優先的に成長し続ける普通ではない淘汰現象も見られた。この淘汰現象は、2次元計算よりも3次元計算の方が発生頻度は少なくなることが分かった。これは、直接相互作用する隣接粒の数が2次元よりも3次元の方が多く、異常淘汰が生じる特殊な粒の組み合わせが発生しにくくなるためである。デンドライト形態の場合、傾き角の大きな UO 粒は、他のデンドライトの間に侵入しながら成長することが可能なため、比較的生き残りやすい傾向が見られた。対照的に、FO デンドライト粒はセル形態の場合よりも粒が広がらずに成長し続ける傾向が見られた。これは、デンドライト一次枝から新しい一次枝が分岐するために周辺に比較的広い空間を必要とするためである。さらに、本計算より得られた粒数の時間変化をべき関数でフィッティングし、得られた指数が Kolmogorov モデルより得られた値よりも小さくなることを明らかにした。この結果は、デンドライト/セル形態の柱状粒の競合成長が、純粋な幾何学的駆動力による淘汰現象とは異なるメカニズムに支配されていることを示している。

上記の評価はいずれも複数のデンドライトが同時に成長する大規模 3 次元フェーズフィールド計算によって初めて実現されたものであり、本章で開発した大規模フェーズフィールド計算手法が凝固組織を評価するための有力な手法であることを示した。

3. 液相流動を伴うデンドライト凝固計算

合金凝固において、鋳込み時に生じる強制対流や、熱・溶質の不均一分布に依存した密度差によって引き起こされる自然対流は、凝固中のデンドライト形態や組織構造を大きく変える[5-8]。本章では、凝固において強い影響を及ぼす液相流動がデンドライト成長に与える影響を3次元的に評価可能な大規模計算手法の構築を目的とする。また、構築した手法を用いて、強制対流や自然対流が3次元デンドライト形態に与える影響の評価を行う。強制対流の問題では、単一の等軸デンドライトの優先成長方向と流動方向を変えた系統的な計算を行い、デンドライト成長速度と流動方向の関係を評価する。自然対流の問題では、一方向凝固過程における複数デンドライトの競合成長計算を行い、重力が一次枝間隔と配列に及ぼす影響を評価する。さらに、大規模計算によるデンドライト樹間液相の透過率算出法を構築し、複数柱状デンドライトに対する透過率を数値計算手法によって初めて評価する。

3.1 数値モデル

本研究では、Rojas らの液相流動を伴う二元合金等温凝固のためのフェーズフィールド格子ボルツマンモデル[109]を3次元問題に拡張する。このモデルでは、デンドライトの成長を二元合金のための定量的フェーズフィールドモデル[66]、液相の流動を格子ボルツマンモデル[179]によってそれぞれ表現する。

フェーズフィールド変数 ϕ および無次元溶質濃度 u の時間発展方程式はそれぞれ次式を用いて表現する。

$$\tau \frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla [W^2 \nabla \phi] + \sum_{r=x,y,z} \frac{\partial}{\partial r} \left[W \frac{\partial W}{\partial (\partial \phi / \partial r)} |\nabla \phi|^2 \right] - f' - \lambda^* g' u \quad (3.1)$$

$$\begin{aligned} \frac{[1+k-(1-k)h(\phi)]}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla u \right) = & \nabla \left(D_l q(\phi) \nabla u + a(\phi) W [1+(1-k)u] \cdot \frac{\partial \phi}{\partial t} \cdot \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \right) \\ & + \frac{1}{2} [1+(1-k)u] \frac{\partial h(\phi)}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{J} \end{aligned} \quad (3.2)$$

ここで、式(3.1)は第2章の式(2.23)と同一であり、その詳細は第2章において記述したため本章では割愛する。また、式(3.2)は第2章の式(2.20)の左辺に溶質の移流項を追加したものである。移流項中の $\mathbf{U}$ は液相の流速ベクトルを示している。式(3.2)についても移流項を除き第2章において記述しているため、本章では詳細は割愛する。

式(3.1)と式(3.2)の計算には有限差分法を用いる。時間の1階微分には一次精度風上差

分を用い、式(3.1)と式(3.2)中のラプラシアンはそれぞれ2次精度中心差分法と最近接および第2近接格子点を用いた離散化手法[120]を適用する。また、式(3.2)中の移流項の空間微分には、5次精度の weighted essentially non-oscillatory (WENO) [180-181]を用いる。

次に、凝固中の液相流動を表現するために、次の BGK モデル[182]の衝突項および外力項から構成される単一緩和時間の格子ボルツマン方程式を用いる。

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_{LBM}} [f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{eq}(\mathbf{x}, t)] + G_i(\mathbf{x}, t) \Delta t \quad (3.3)$$

ここで、 f_i および f_i^{eq} はそれぞれ離散粒子速度 $\mathbf{c}_i$ 方向の粒子分布関数および平衡分布関数である。また、 τ_{LBM} は格子ボルツマン緩和時間、 Δt は時間増分をそれぞれ示している。液相の密度 ρ および流速 $\mathbf{U}$ はそれぞれ次式より得られる。

$$\rho = \sum_{i=0}^{Q-1} f_i \quad (3.4)$$

$$\mathbf{U} = \frac{1}{\rho} \sum_{i=0}^{Q-1} \mathbf{c}_i f_i \quad (3.5)$$

ここで、 Q は離散速度の数を示している。本研究では、図 3.1 に示す 3 次元 19 速度 (D3Q19) モデルを用いるため、 $Q=19$ である。平衡分布関数 f_i^{eq} はマクスウェル分布に基づいて導出された次式を用いる[183]。

$$f_i^{eq} = w_i \rho \left[1 + \frac{3(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U})}{c^2} + \frac{9(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U})^2}{2c^4} - \frac{3\mathbf{U} \cdot \mathbf{U}}{2c^2} \right] \quad (3.6)$$

ここで、 w_i は重み関数、 $c = \Delta x / \Delta t$ は格子速度である。なお、 Δx は格子幅である。各離散速度方向における $\mathbf{c}_i$ の各成分と w_i の値を表 3.1 に示す。2次精度離散外力項 G_i は次式で与えられる。

$$G_i = w_i \rho \left[3 \frac{\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U}}{c^2} + 9 \frac{(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U}) \mathbf{c}_i}{c^4} \right] \cdot \mathbf{G} \quad (3.7)$$

ここで、 $\mathbf{G}$ は固液界面において滑りなし条件を適用するための散逸抗力[83]であり、次式で表される。

$$\mathbf{G} = -\frac{2\rho v h}{W_0^2} \left(\frac{1+\phi}{2} \right)^2 \cdot \mathbf{U} \quad (3.8)$$

ここで、 ν は動粘性係数であり、本研究で用いる格子ボルツマンモデルでは次式で与えられる.

$$\nu = \frac{(\tau_{LBM} - 0.5)\Delta x^2}{3\Lambda t} \quad (3.9)$$

また, h は定数であり $h = 2.757$ で与えられる[83].

3.2 計算手法

フェーズフィールド格子ボルツマン計算を高速化するため、複数の GPU を用いた並列計算手法を開発した．計算コードは C/C++ 言語をベースとして GPU 計算用のプログ

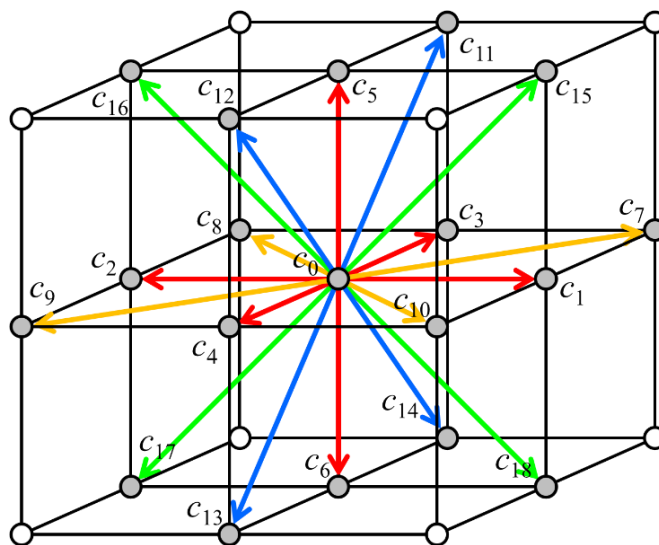


Fig.3.1 Schematic of discrete velocities in D3Q19 model.

Table 3.1 Discrete particle velocities and weighting coefficients in the D3Q19 model.

[illegible]

ラミング言語, Compute Unified Device Architecture (CUDA)を用いて記述した. また, ノード間通信には message passing interface (MPI)を用いた. 全計算領域の分割および分割領域境界のデータ交換の概略図を図 3.2 に示す. 本研究では, y 方向および z 方向の 2 次元分割を採用した. 図に示すように, ある GPU が受け持つ分割領域境界の ϕ と u , $d\phi/dt$, $\mathbf{J}$, $f_i (i=0, 1, \dots, 18)$ の値を GPU から CPU に転送する. このとき, 5 次精度の WENO を用いて移流項を計算する u に関しては 3 格子分, ϕ と $d\phi/dt$, $\mathbf{J}$, f_i については 1 格子分の境界データをそれぞれ転送する. 境界データを転送された CPU は, 隣接する分割領域を受け持つ CPU 間で MPI 通信を行い, 境界のデータを交換する. 交換したデータは CPU から GPU に転送される. 以上の処理を, 各計算ステップの開始時に y 方向およ

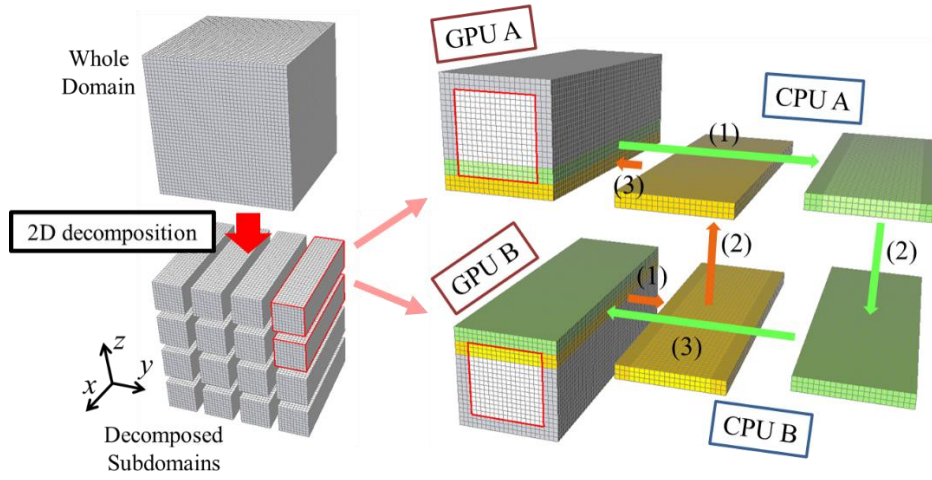


Fig.3.2 2D decomposition of the whole computational domain and data exchange on the decomposed subdomain boundaries in multi-GPU parallel computations.

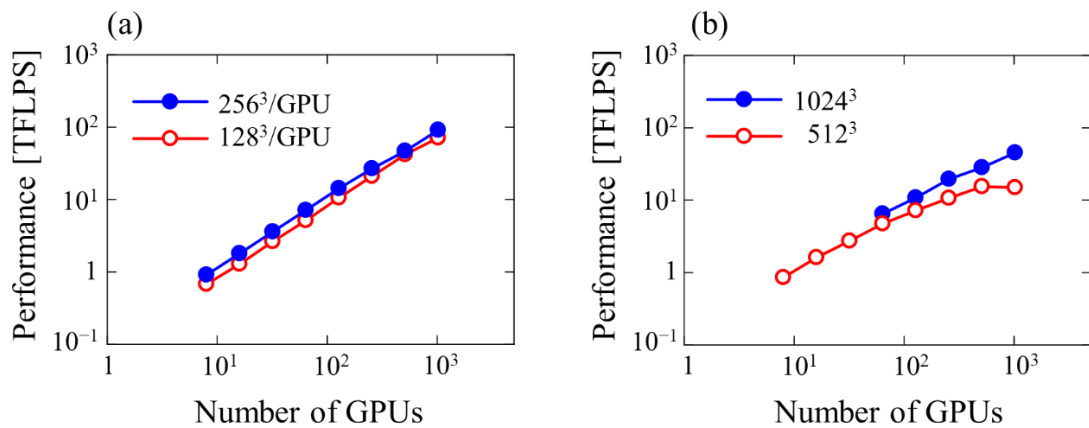


Fig.3.3 Scalability evaluation results in (a) weak and (b) strong tests of the multi-GPU parallel computational code for 3D PFLBM. Weak scaling tests are performed using the lattice numbers of 128^3 and 256^3 per GPU. Strong scaling tests are performed for the lattice numbers of 512^3 and $1,024^3$.

び z 方向に対して行う。

本章では、第3章3節の計算性能評価および第3章4節の強制対流下におけるデンドライト成長計算、第3章6節の透過率評価計算において、東京工業大学の TSUBAME2.5 を用いた。TSUBAME2.5 は NVIDIA 社の GPU, Tesla K20X を 3 基と Intel 社の CPU, Xeon X567 を 2 基搭載した計算ノード 1408 基から構成される。また、第3章5節の自然対流を伴う柱状デンドライト成長計算には TSUBAME2.5 の後継機である TSUBAME3.0 を用いた。TSUBAME3.0 は NVIDIA 社の GPU, Tesla P100 を 4 基と Intel 社の CPU, Xeon E5-2680 V4 を 2 基搭載した計算ノード 540 基から構成される。

3.3 計算性能評価

開発した計算手法の強スケーリング評価および弱スケーリング評価を行う。各 GPU の計算格子点数を 128^3 および 256^3 とした弱スケーリング評価における測定結果を図 3.3(a)に示す。図より、測定した GPU 数の範囲において、GPU 数と演算性能に線形関係が得られており、GPU 数を増やすことで計算効率を保ちながら計算規模を拡張可能であることが確認できた。また、強スケーリング評価の結果を図 3.3(b)に示す。図に示すように、 512^3 格子および $1,024^3$ 格子の計算において、GPU 数が 100 基および 500 基以下の範囲において良好なスケーリングが得られることが確認できた。

3.4 強制対流下におけるデンドライト成長

本章の計算では、モデル材料として Al-3wt%Cu を用いる。本研究で用いた材料物性を表 3.2 に示す。このとき、計算を安定かつ効率的に実施するため、動粘性係数 ν のみ $\tau_{LBM} = 1$ とし計算に用いた Δx と Δt より式(3.9)から算出する。本計算では Δt を $\Delta t = \Delta x^2 / (28D_l)$ と設定するため、動粘性係数は $\nu = 1.4 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ となる。この値は実験において測定された値[184]の約 1/30 である。この仮定により、計算は実材料の動粘性係数の値を使った場合と比べて約 30 倍高速化する。このとき、レイノルズ数 Re は最大でおよそ 2.3 程度であり、実際の動粘性係数の値の場合には Re はおよそ 0.08 である。この

Table 3.2 Material properties of Al-3 wt%Cu alloy.

Parameter	Variable	Value	Reference
Melting temperature (K)	T_m	933.3	[162]
Slope of liquidus line (K/at. frac.)	m	-620	[163]
Diffusivity in liquid (m^2/s)	D_l	3.0×10^{-9}	[164]
Diffusivity in solid (m^2/s)	D_s	3.0×10^{-13}	[164]
Partition coefficient (-)	k	0.14	[164]
Gibbs-Thomson constant (Km)	Γ	0.24×10^{-6}	[165]
Anisotropic strength (-)	ε_4	0.02	

ようなレイノルズ数の小さい条件の場合、計算より得られるデンドライト形態は動粘性係数の値によってほとんど変わらないとして計算を実施する。

3.4.1 単一デンドライト成長

(1) 収束挙動評価

高精度な評価が可能な格子幅 Δx を決定するために、まず、強制対流下において成長す

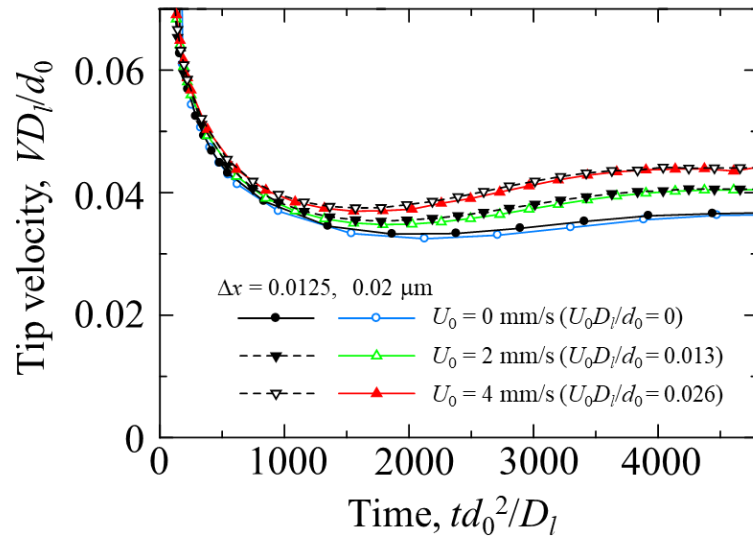


Fig.3.4 Time evolutions of upstream tip velocity V for inflow velocities of $U_0 = 0$ (without flow), 2, and 4 mm/s and grid sizes of $\Delta x = 0.0125$ and $0.02 \mu\text{m}$.

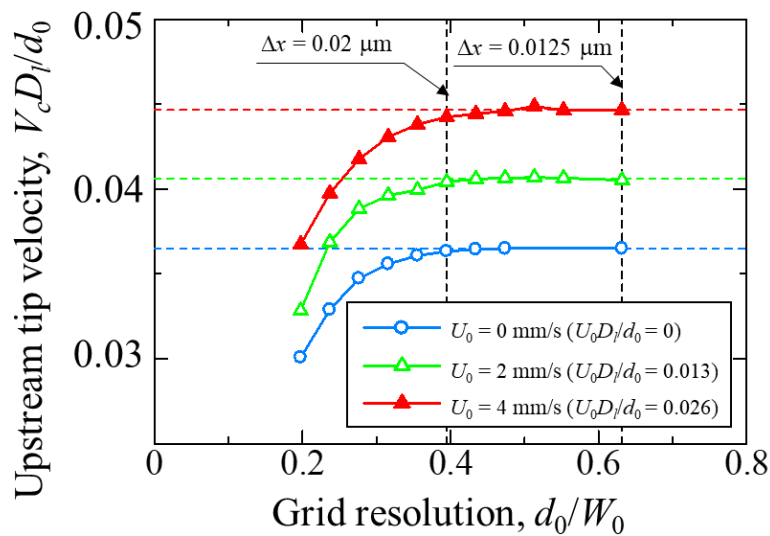


Fig.3.5 Convergence behaviors of upstream tip velocity V_c at a steady growth state for three different U_0 .

るデンドライトの成長速度に関して収束挙動評価を行う．計算では，界面幅について $W_0 = \Delta x/0.4$ ，計算領域を $L_x \times L_y \times L_z = 12.8 \times 6.4 \times 6.4 \mu\text{m}^3 (= 648.6 \times 324.3 \times 324.3 d_0^3)$ と設定する．初期条件として，計算領域を無次元過冷度 $u_0 = -0.5$ ($T = 919.1 \text{ K}$) の合金溶液で満たし，一様流れ $\mathbf{U} = (-U_0, 0, 0)^T$ を与える．また，デンドライト形態の対称性を考慮して，結晶方位のオイラー角 $(\phi, \theta, \psi) = (0, 0, 0)$ の固相核を一つ位置 $(x, y, z) = (8.0 \mu\text{m}, 0, 0)$ に配置して計算を開始する．境界条件として， y 方向および z 方向の境界には ϕ , u について零ノイマン条件， $\mathbf{U}$ について滑り条件をそれぞれ適用する．また， x 方向の境界条件に関して， ϕ , u は零ノイマン条件， $\mathbf{U}$ は $x = 0$ において流入条件 ($\mathbf{U} = (-U_0, 0, 0)^T$)， $x = L_x$ において流出条件 ($\partial \mathbf{U} / \partial x = (0, 0, 0)^T$) をそれぞれ適用する．後述の単一デンドライト成長計算における最大流速は 4 mm/s 以下であるため，流入速度 U_0 は $U_0 = 0, 2, 4 \text{ mm/s} (= 0, 0.0132d_0/D_l, 0.0264d_0/D_l)$ と設定して収束挙動評価を行う．

格子幅を $\Delta x = 0.0125 \mu\text{m}$ ($d_0/W_0 = 0.632$) および $\Delta x = 0.02 \mu\text{m}$ ($d_0/W_0 = 0.395$) と設定した場合の計算における上流側に向かって成長する $[100]$ デンドライト一次枝の成長速度の時間変化を図 3.4 に示す．図 3.4 に示す全ての条件において，上流側に成長するデンドライト先端の成長速度は，計算開始直後に一度減速した後，緩やかに加速し，定常速度に収束している様子が観察される．この傾向は，先行研究において実施された計算において観察された傾向と同様である[104]．さらに，定常成長状態が達成される時刻は U_0 が大きいほど早かった．これは， U_0 が大きいほど上流側に成長するデンドライト一次枝先端近傍の溶質が後方へと速やかに排除され，その結果，結晶形態が初期核の球形からデンドライト形態へと変化するのが早まるためである．定常成長状態の上流側デンドライト先端の成長速度 V_c を横軸に格子解像度 d_0/W_0 を取り図 3.5 にプロットする．図より，格子幅を小さくすると，全ての U_0 に対して V_c が一定値に収束する様子が確認できた．また， V_c の収束値は U_0 が大きいほど高くなり， V_c が収束するのに必要な格子幅は U_0 が大きいほどより小さくなることが確認できた．図 3.5 の結果に基づき，以降の計算に用いる格子幅は， $U_0 = 4 \text{ mm/s}$ において計算精度 98.7% である $\Delta x = 0.02 \mu\text{m}$ と決定した．なお，図 3.4 に示すように， $\Delta x = 0.02 \mu\text{m}$ を用いた場合と本評価計算における最小の格子幅 $\Delta x = 0.013 \mu\text{m}$ を用いた場合において，上流側に成長するデンドライトの成長速度の時間変化は良好に一致している．この強制対流下における 3 次元デンドライト成長の収束挙動評価は我々が把握する範囲において初めて実施された．

(2) 計算条件

デンドライトの優先成長方向と強制対流方向の方位差がデンドライト成長形態に与える影響の評価を目的とした評価の計算条件を図 3.6 に示す．計算の開始時， $u_0 = -0.5$ ($T = 919.1 \text{ K}$) の合金溶液に満たされた $20.48^3 \mu\text{m}^3 (= 1,024^3 \Delta x^3 = 1037.7^3 d_0^3)$ の計算領域を $1,024^3$ 格子に分割する．デンドライトの成長は，計算領域中央に置かれた半径 $22\Delta x$ の球形の固相核から開始される．表 3.3 に示すように，配置した固相核のオイラー角を変

更して5種類の計算を行った。流入速度は $U_0 = 2 \text{ mm/s}$ とし、境界条件については前述の収束挙動評価と同様に設定した。また、比較のため、領域サイズ $20.48^2 \mu\text{m}^2 (= 1024^2 \Delta x^2 = 1037.7^2 d_0^2)$ の2次元計算を表3.3に示すオイラー角を用いて実施した。

3次元計算において、計算領域は y 方向および z 方向にそれぞれ16分割し、分割した領域の計算にそれぞれGPUを1基割り当てる。計算には時間増分 $\Delta t = 4.76 \times 10^{-9} \text{ s}$ を用い、 3×10^5 time steps の計算を行った。3次元計算の計算実行時間は256 GPUを用いて約8時間要した。この計算時間は、式(3.3)の格子ボルツマン方程式を解かずに式(3.1)と式(3.2)のフェーズフィールド凝固モデルのみ計算した場合の計算時間の約4.4倍である。

(3) デンドライト一次枝先端の成長速度

図3.7に3次元デンドライト一次枝の成長速度が定常状態になる時刻 $t = 1.3 \text{ ms}$ ($= 275,000 \Delta t = 1.0 \times 10^4 d_0/D_l$)におけるデンドライト形態を示す。表3.3のCase#1-#5に対応する3次元計算の結果を図3.7(a)-(e)に示す。ここで、図3.7(a)-(e)の上段は俯瞰図、下部は $[001]$ 方向から見た図である。また、図3.7(f)-(h)はCase#6, #8, #10に対応する2次元計算の結果を示している。これらの計算はデンドライト成長の初期段階に対応しており、デンドライト高次枝の発生は2次元計算と3次元計算の双方で見られない。図3.7(a)-(e)下段および図3.7(f)-(h)に示す円は、対流がない場合の2次元計算および3次元計算にお

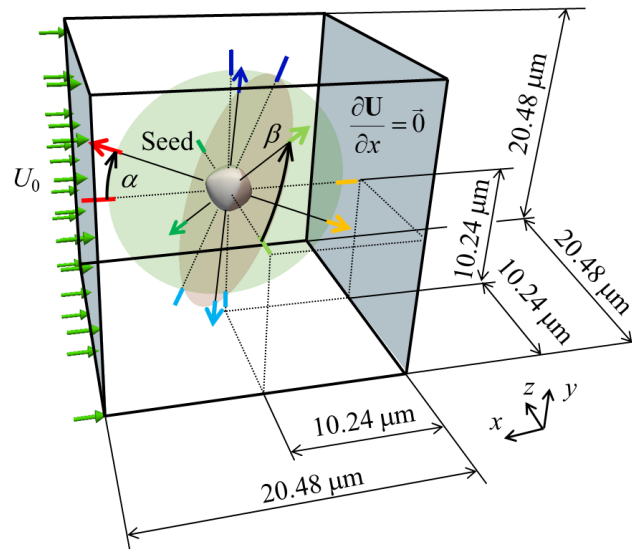


Fig.3.6 Computational conditions for dendrite growth simulation in isothermal solidification of a binary alloy with forced convection of the inlet flow $U_0 = 2 \text{ mm/s}$ ($U_0 d_0/D_l = 0.0132$). The Euler angles of α and β were changed as given in Table 2 to assess the effects of misorientation between the $\langle 100 \rangle$ preferred growth direction and the forced convection direction.

Table 3.3 Euler angles for ten different 3-D and 2-D simulations.

Case	Dimensions	α [°]	β [°]
#1	3-D	0	0
#2	3-D	22.5	0
#3	3-D	45.0	0
#4	3-D	22.5	45.0
#5	3-D	45.0	45.0
#6	2-D	0	0
#7	2-D	11.3	0
#8	2-D	22.5	0
#9	2-D	33.8	0
#10	2-D	45.0	0

ける同時刻のデンドライト一次枝先端位置をそれぞれ示している．図 3.7(a)-(e)下段より，上流方向に傾くデンドライト一次枝は対流がない場合の一次枝よりも長く，下流側に傾くデンドライト一次枝は短くなる様子が確認できた．この傾向は，図 3.7(f)-(h)に示す 2 次元計算でも同様である．この時，2 次元計算では，流体がデンドライト一次枝の紙面方向側面を通り抜けることが出来ず流路が x - y 平面方向に限定される．そのため，計算領域上部と下部の流速は 3 次元計算の場合よりも 2 次元計算の方が速くなる．また，デンドライト先端近傍の溶質濃度は 3 次元計算よりも 2 次元計算の方が高くなるため，一次枝の成長速度が 2 次元計算において 3 次元計算よりも遅くなっている．

各デンドライト先端の成長速度の時間変化を図 3.8 に示す．ここで，図 3.8 (a), 3.8 (b), 3.8 (c)はそれぞれ，Case #1 と#6，Case #2 と#8，Case #3 と#10 の結果と対応する．全てのデンドライト先端の成長速度は，2 次元計算と 3 次元計算で同様の傾向を示した．2 次元計算において，デンドライト先端の成長速度は単調に減速し，本計算の時間内では一定値に収束しなかった．2 次元計算の場合，溶質拡散が 2 次元方向のみに限定されるため，3 次元計算の場合と比べてデンドライト先端前方の溶質拡散層が厚くなる．そのため，2 次元計算における円形固相核からデンドライトへの形態変化は，3 次元の形態変化よりも遅くなる．図 3.8 (a)に示す Case #1 において，強制対流方向に対して垂直な $[0\ 1\ 0]$, $[0\bar{1}\ 0]$, $[0\ 0\ 1]$, $[0\ 0\bar{1}]$ 方向に成長するデンドライト一次枝の成長速度が一致している．また，上流側に成長するデンドライト一次枝の成長速度が最も速く，下流側に成長する一次枝の成長速度が最も遅くなった．これは，デンドライト一次枝の優先成長方向と強制対流方向が一致している場合の典型的な成長挙動である[104]．図 3.8 (b)に示す Case #2 において，デンドライト先端の成長速度は $[1\ 0\ 0]$, $[0\bar{1}\ 0]$, $[0\ 0\ 1]$ ($[0\ 0\bar{1}]$), $[0\ 1\ 0]$, $[\bar{1}\ 0\ 0]$ の順に速かった．また，図 3.8 (c)に示す Case #3 において，デンドライト先端の成長速度は $[1\ 0\ 0]$ ($[0\bar{1}\ 0]$), $[0\ 0\ 1]$ ($[0\ 0\bar{1}]$), $[0\ 1\ 0]$ ($[\bar{1}\ 0\ 0]$) の順に速かった．この結果は，上流方向とデンドライト一次枝の優先成長方向との方位差が小さいほどデンドライト一次枝の成長速度が速くなることを示している．

この知見を確認するため、表 3.3 に示す全てのデンドライト一次枝先端の時刻 1.3 ms における成長速度 V を図 3.9 に示す。ここで、横軸には $\langle 100 \rangle$ 優先成長方向と上流方向の方位差 θ 、縦軸には対流がない場合の同時刻のデンドライト一次枝成長速度 V_0 に対する比 $(V - V_0)/V_0$ を示している。また、3 次元計算および 2 次元計算の結果に対する多項式フィッティング曲線を図中に赤実線および黒破線でそれぞれ示す。なお、3 次元計算のフィッティング曲線は $\beta = 0^\circ$ の場合の計算結果(Cases #1, #2, #3)のみを用いて算出した。図 3.9(a)に示すように、 $(V - V_0)/V_0$ は 2 次元計算と 3 次元計算の両方とも θ の増加に伴い単調に減少した。また、デンドライト一次枝の成長速度が最大となる $\theta = 0^\circ$ のときの成長速度 $V_{\max}$ と最小となる $\theta = 180^\circ$ のときの成長速度 $V_{\min}$ の差は 3 次元計算よりも 2 次元計算の方が大きく、2 次元計算の方が 3 次元計算よりも強く強制対流の影響を受けることが分かった。一方、デンドライト一次枝が流れ方向に対して垂直に成長する $\theta = 90^\circ$ の成長速度は対流が無い場合の成長速度とほぼ同じであった。この傾向は、純物質のデンドライト成長計算[105]や過冷却溶液中において沈降しながら成長する等軸デンドライトの実験観測[15]においても観察されている。図 3.9(a)中の 2 次元計算結果に対するフィッティング曲線は 2 次元計算結果とよく一致している。一方で、3 次元計算

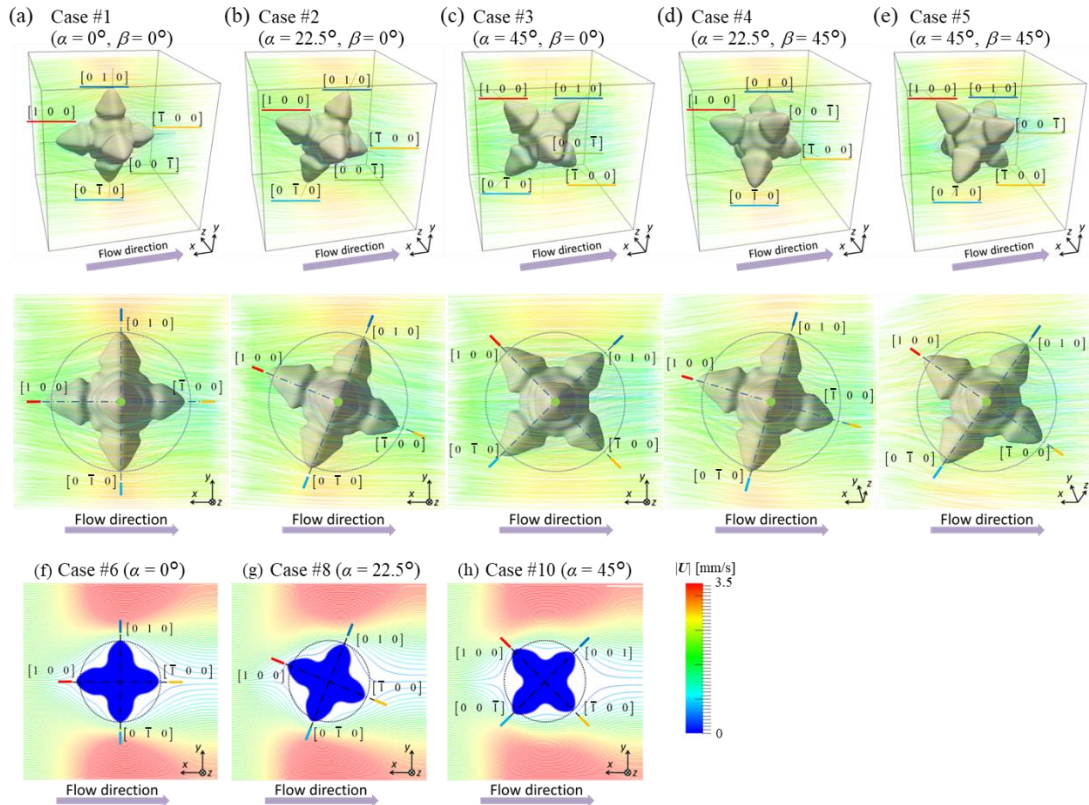


Fig.3.7 Dendrite morphologies and streamlines at $t = 1.3 \text{ ms}$ ($= 275,000\Delta t = 1.0 \times 10^4 d_0^2/D_l$). The bottom figures of (a)–(e) are the views from the $[0 0 \bar{1}]$ direction of the dendrite. The circles show the dendrite tip positions without convection ($U_0 = 0$).

では Case #4 と #5 ($\beta = 45^\circ$)における $[0\ 0\ 1]$ ($[0\bar{1}0]$)および $[0\ 1\ 0]$ ($[0\ 0\bar{1}]$)方向の一次枝の成長速度の値が 3 次元計算結果に対するフィッティング曲線よりも僅かに大きくなっている。これは、図 3.7(d), 3.7(e)に示すように、それらの一次枝先端の上流側に他のデンドライト一次枝がなく、 $\beta = 0^\circ$ の場合と異なり上流側から溶質濃度の高い溶液が流れてこないためである。

デンドライト一次枝先端の曲率半径 R は $R = a \nabla \cdot \mathbf{n} = a \nabla \cdot (\nabla \phi / |\nabla \phi|)$ より計算する[185]。ここで、 $\mathbf{n}$ は固液界面における単位法線方向である。また、 a は定数であり 2 次元計算では $a = 1$ 、3 次元計算では $a = 0.5$ である。 R の測定に必要な空間微分の計算には 4 次精度中心差分を用いた。対流がない場合のデンドライト一次枝先端の曲率半径 R_0 は、 ϕ の空間微分から算出する上記の方法によって $R_0 = 0.441\ \mu\text{m}$ ($= 22.3d_0$)と算出された。図 3.7(a)に示す Case #1 の上流側に成長するデンドライト一次枝について、その先端曲率半径は $R = 0.422\ \mu\text{m}$ ($= 21.4d_0$)と算出された。 R の値を用いて算出したデンドライト成長に関するペクレ数 $Pe_g = VR/(2D_l)$ と流速に関するペクレ数 $Pe_f = U_0 R/(2D_l)$ はそれぞれ $Pe_g = 0.445$, $Pe_f = 0.141$ と算出される。一方、対流がない場合、 Pe_g は R_0 を用いて $Pe_{g0} = 0.406$ と算出される。この結果より、Case #1 の上流側に成長するデンドライト一次枝の Pe_g は対流がない場合の Pe_{g0} よりも 9.6%大きくなることが分かった。これは純物質の 3 次元

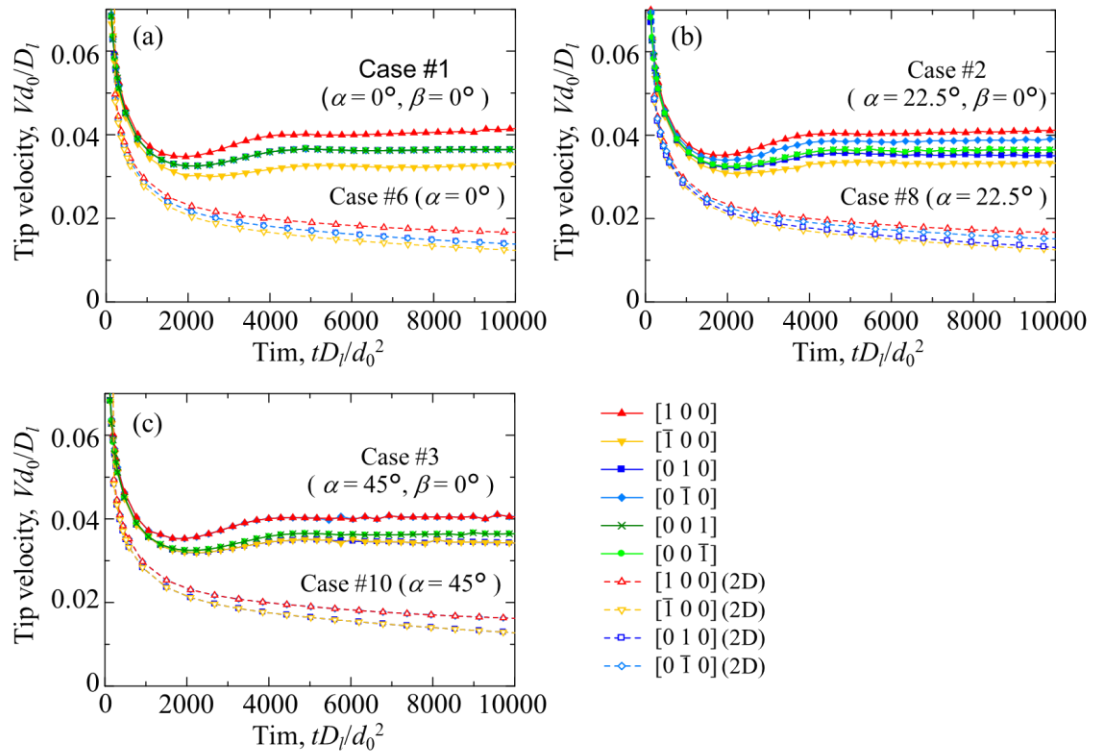


Fig.3.8 Time evolutions of dendrite tip velocities: (a) Cases #1 and #6 ($\alpha = 0^\circ, \beta = 0^\circ$), (b) Cases #2 and #8 ($\alpha = 22.5^\circ, \beta = 0^\circ$), and (c) Cases #3 and #10 ($\alpha = 45^\circ, \beta = 0^\circ$). The solid and dashed lines indicate the 3-D and 2-D results, respectively.

単一デンドライト成長に関するフェーズフィールド計算結果と同様の傾向を示している[105-106].

図 3.9(b)に、全計算結果の時刻 1.3 ms における各デンドライト一次枝先端の曲率半径 R を示している. 図中において、3 次元計算結果($\beta = 0^\circ$)および 2 次元計算結果に対する多項式フィッティング曲線をそれぞれ赤実線と黒破線で示す. 図に示すように、先行研究[105]の結果と同様に、 $\theta = 0^\circ$ の場合の先端曲率半径 R は R_0 よりも小さく、 $\theta = 90^\circ$ の場合は R_0 とほぼ同じ値に、 $\theta = 180^\circ$ の場合には R_0 よりも大きくなった. さらに、デンドライト一次枝が $\theta = 0^\circ$ から $\theta = 30^\circ$ へ傾くにつれて R が小さくなり、 $\theta = 30^\circ$ 近傍において最小値を取った. その後、デンドライト一次枝が $\theta = 30^\circ$ から $\theta = 90^\circ$ へ傾くにつれて R が単調に大きくなり、 $90^\circ < \theta < 150^\circ$ の範囲において R/R_0 がほぼ 1 となった. 最後に、 $\theta = 150^\circ$ から $\theta = 180^\circ$ の範囲において R は大きくなった. この傾向は 2 次元計算と 3 次元計算双方で観察された. また、図 3.9(a)に示す成長速度 V の結果と同様に、2 次元計算においてデンドライト一次枝先端の曲率半径が変化する範囲は 3 次元計算の結果よりも大きくなった.

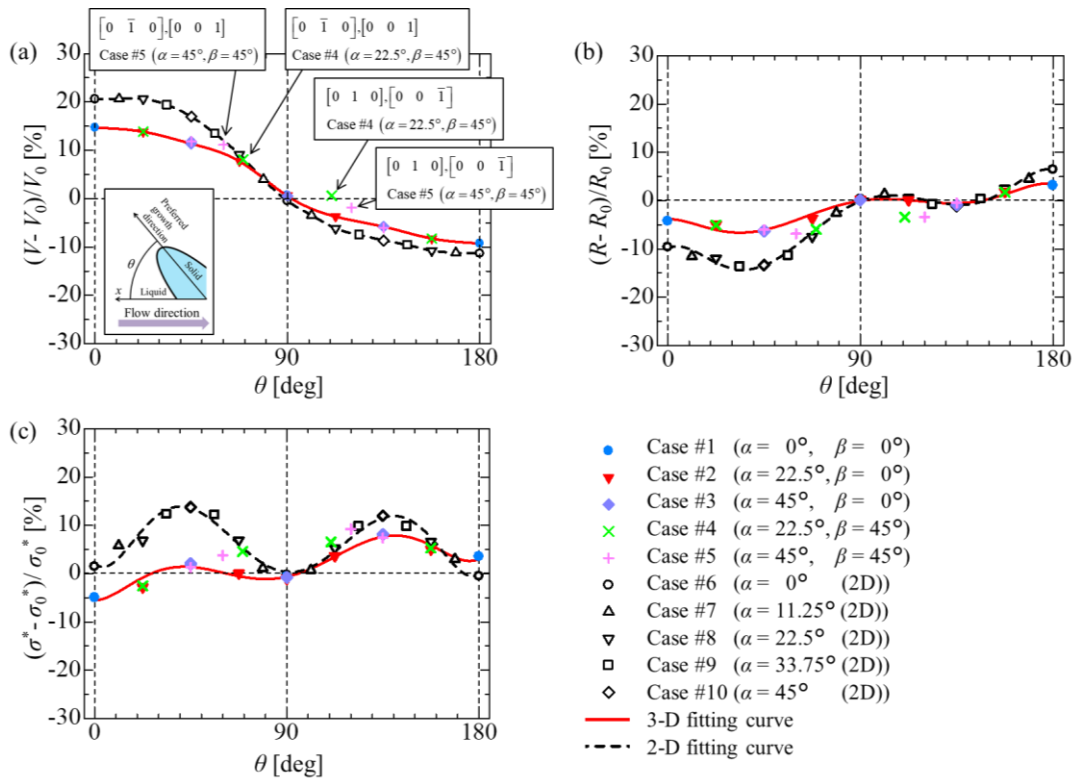


Fig.3.9 Relationships between the angle θ between the x-axis and the preferred growth direction and the relative differences in the (a) dendrite tip velocities V , (b) radii R , and (c) selection parameter values σ^* without forced convection V_0 , R_0 , and σ_0^* at $t = 1.3$ ms ($= 275,000\Delta t = 1.0 \times 10^4 d_0^2/D_l$).

Selection parameter $\sigma^* = 2d_0D_l/(VR^2)$ [186]の変化を図 3.9(c)に示す. 対流がない場合, σ^* は3次元計算では $\sigma_0^* = 0.11$, 2次元計算では $\sigma_0^* = 0.22$ と算出された. ここで, 2次元計算の σ_0^* は3次元計算の2倍の値になった. 異なる異方性強度や液相と固相の溶質拡散係数を用いて実施された先行研究の計算結果と本研究より得られた σ^* の値を直接比較することはできないため, 先行研究の結果との定性的な比較を行う. Jeong らは, 純物質の3次元等軸デンドライト成長計算において, 2次元計算における σ^* の値は3次元計算の値よりも7.09倍大きくなると報告している[104]. 2次元計算における σ^* の値が3次元計算よりも大きくなる傾向は本研究でも得られている. 図 3.9(c)に示すように, 2次元計算と3次元計算の両方で $\theta = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ において $(\sigma^* - \sigma_0^*)/\sigma_0^*$ の値が5%以下になった. そのため, $\theta = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ のとき, σ^* は液相流動の影響をほとんど受けないと結論付けた. それ以外の θ の範囲では, デンドライト先端形状の放物線形状からのずれが大きくなるため, θ に依存して $(\sigma^* - \sigma_0^*)/\sigma_0^*$ の値が変化している. また, このとき, $\theta = 45^\circ$ と $\theta = 135^\circ$ の近傍において $(\sigma^* - \sigma_0^*)/\sigma_0^*$ の値が極大値を取っている. 本研究における $(\sigma^* - \sigma_0^*)/\sigma_0^*$ の値は15%以下と先行研究[106]に比べて比較的小さく, σ^* は θ によらずほぼ一定であると見なせる.

(4) デンドライト一次枝の傾き

デンドライト一次枝の優先成長方向と実際の成長方向との傾き角 $\Delta\theta$ および傾いた方向を図 3.10 に矢印の大きさと向きでそれぞれ示している. 図 3.10 に示すデンドライトの形態は図 3.7 と同様である. 図 3.10(a)に示すように, $[1\ 0\ 0]$ および $[\bar{1}\ 0\ 0]$ 方向に成長

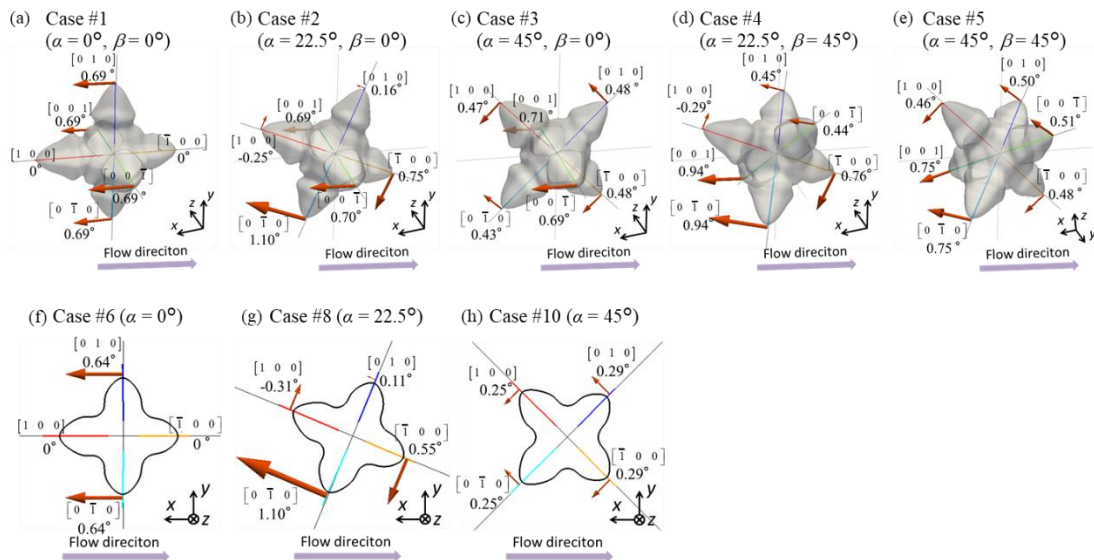


Fig.3.10 Inclination direction (arrow direction) and inclination angle $\Delta\theta$ (arrow length and value) of actual growth direction from the preferred growth direction of the dendrite arms at $t = 1.3\text{ ms} (= 275,000\Delta t = 1.0 \times 10^4 d_0^2/D_l)$.

するデンドライト一次枝は優先成長方向に向かって成長した．一方，流れ方向に対して垂直に成長する図 3.10(a)の $[0\ 1\ 0]$, $[0\bar{1}\ 0]$, $[0\ 0\ 1]$, $[0\ 0\bar{1}]$ および図 3.10(b)と 3.10(c)の $[0\ 0\ 1]$, $[0\ 0\bar{1}]$ 方向に成長するデンドライト一次枝は全て上流側に 0.7° 傾いた．この結果は，これらのデンドライト一次枝の成長挙動が上流側に存在するデンドライト一次枝の影響を受けていないことを意味している．それ以外のデンドライト一次枝も上流側に傾いたが，図 3.10(b)と 3.10(d)の $[1\ 0\ 0]$ 方向デンドライト一次枝のみわずかに下流側方向に傾いた．この下流側に傾く現象は，図 3.10(g)の2次元計算における $[1\ 0\ 0]$ 方向デンドライト一次枝においても観察された．

図 3.11 に全てのデンドライト一次枝の優先成長方向からの傾き角 $\Delta\theta$ をプロットした． $\Delta\theta$ の正と負はそれぞれ上流方向もしくは下流方向へのデンドライト一次枝の傾きを示している．図中の赤実線および黒破線はそれぞれ3次元計算および2次元計算にお

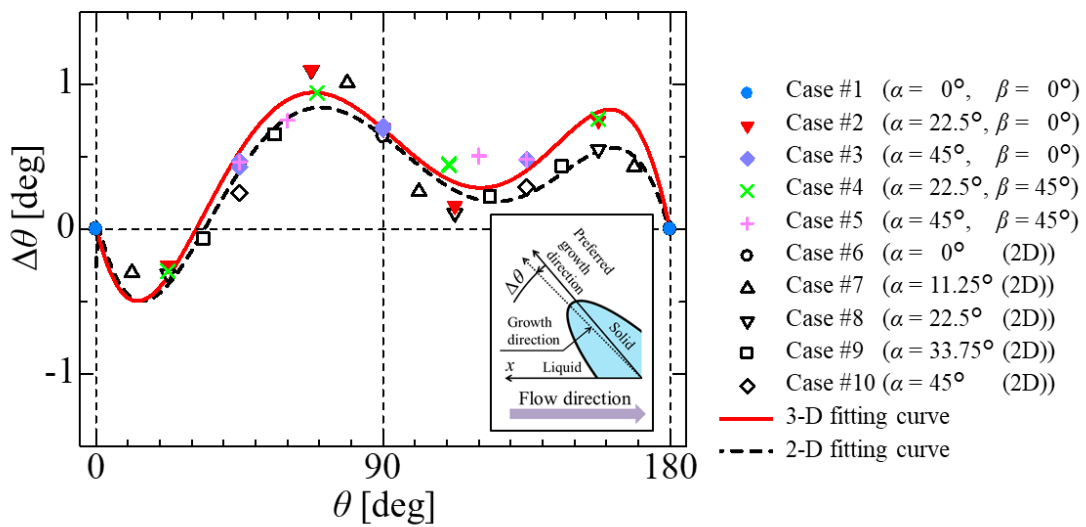


Fig.3.11 Inclination angles $\Delta\theta$ of the actual growth direction from the preferred growth direction for all dendrites at $t = 1.3$ ms ($= 275,000\Delta t = 1.0 \times 10^4 d_0^2/D_l$).

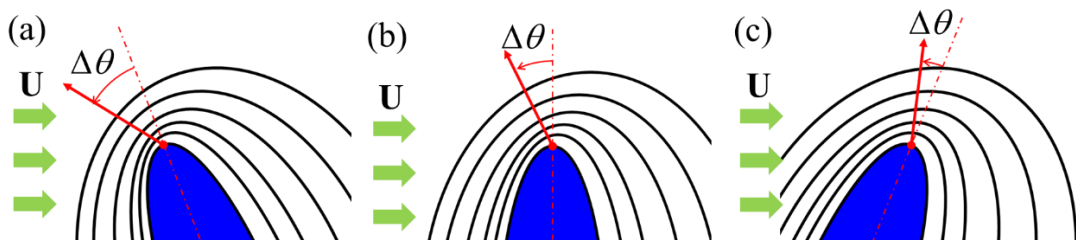


Fig.3.12 Schematic images of contour lines of solute concentration around dendrite tip in the region of approximately $45^\circ < \theta < 135^\circ$ (region A): (a) $\theta \sim 70^\circ$, (b) $\theta \sim 90^\circ$, and (c) $\theta \sim 120^\circ$.

ける $\Delta\theta$ のフィッティング曲線である．ここで、フィッティング曲線は5次多項式の最小二乗法によって得られた．なお、3次元計算のフィッティング曲線の算出には $\beta = 0^\circ$ の結果のみを用いた．3次元計算と2次元計算のフィッティング曲線は、2つの極大値と2つの極小値を取るほぼ同様の変化を示した．

図3.11に示すように、 $\Delta\theta$ について2次元と3次元で同様の変化の傾向を示したため、以降の議論は2次元計算の結果を用いて行う．図3.11に示す $\Delta\theta$ の変化の傾向は $45^\circ < \theta < 135^\circ$ の範囲Aと $\theta < 45^\circ$ と $\theta > 135^\circ$ の範囲Bの2種類に大別できる．図3.12に範囲Aにおけるデンドライト一次枝先端近傍の溶質濃度の等高線の概略を示す．液相の流動が無い場合、溶質濃度の等高線は優先成長方向に対して線対称になる．一方で、強制対流を伴う場合、溶質濃度の等高線は下流方向にずれ、デンドライト一次枝先端の上流側において溶質濃度の空間勾配が大きく、下流側において小さくなる．その結果、デンドライト一次枝は図3.12において矢印で示すように上流側に傾いて成長する．優先成長方向が上流側へ傾いた場合(図3.12(a))、流れ方向と上流側のデンドライト先端近傍における溶質濃度の等高線が直交に近づく．この時、上流側のデンドライト先端近傍において移流される溶質が増加し、上流側の一次枝先端近傍の溶質濃度勾配が大きくなる．その結果、デンドライト一次枝先端が上流側に向かって成長しやすくなり、 $\theta = 90^\circ$ の場合よりも $\Delta\theta$ が大きくなる．一方で、優先成長方向が下流側に傾いた場合(図3.12(c))、流れ方向と上流側のデンドライト先端近傍における溶質濃度の等高線が平行に近づく．この時、上流側の溶質濃度勾配は小さくなり、 $\theta = 90^\circ$ の場合よりも $\Delta\theta$ が小さくなる．次に、範囲Bに関して考察を行う．ここで、 $\theta < 45^\circ$ の範囲において $\Delta\theta$ が極小値を取る理由と $\theta > 135^\circ$ において極大値を取る理由は同じであると考えられる．図3.13に範囲Bにおけるデンドライト一次枝先端近傍の流線の概略を示す． $\theta < 45^\circ$ と $\theta > 135^\circ$ の両方の場合において、デンドライト先端付近によどみ点が生じる．よどみ点が発生する側のデンドライト先端近傍の溶質濃度勾配は、発生しない側の溶質濃度勾配よりも小さくなる．その結果、上流方向および下流方向に成長するデンドライト一次枝は両方ともよどみ点

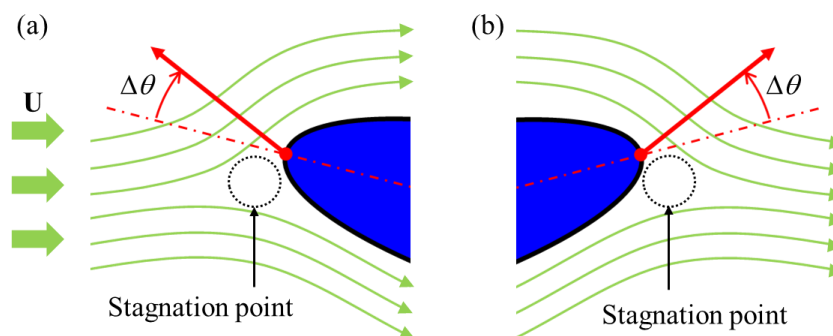


Fig.3.13 Schematic images of flow lines around dendrite tip in the regions (a) $\theta < 45^\circ$ and (b) $\theta > 135^\circ$ (region B).

のない側へと傾く．この時，上流方向に成長するデンドライト一次枝($\theta < 45^\circ$)は下流方向に傾き($\Delta\theta < 0^\circ$)，下流方向に成長する一次枝($\theta > 135^\circ$)は上流側に傾く($\Delta\theta > 0^\circ$)．図 3.11 に示した傾き角の非線形変化は，デンドライト先端形状の放物線形状からのずれを大きくし，デンドライト一次枝先端の曲率半径の非線形変化を引き起こしたと考えられる．液相の流動が生じる場合において，デンドライト先端形状がどのように変化するかの詳細な評価は今後の課題である．

3.4.2 複数デンドライト成長

開発した大規模フェーズフィールド格子ボルツマン計算手法の可用性を評価するために，強制対流下における複数デンドライト成長の大規模計算を実施した．無次元過飽和度 $u_0 = -0.5$ ，流速 $\mathbf{U} = (0, U_0, 0)^T$ の Al-3wt%Cu 溶液で満たされた $L_x \times L_y \times L_z = 61.44 \times 123.04 \times 61.44 \mu\text{m}^3$ の計算領域を設定し， $1,536 \times 3,072 \times 1,536$ 格子に分割した．ラン

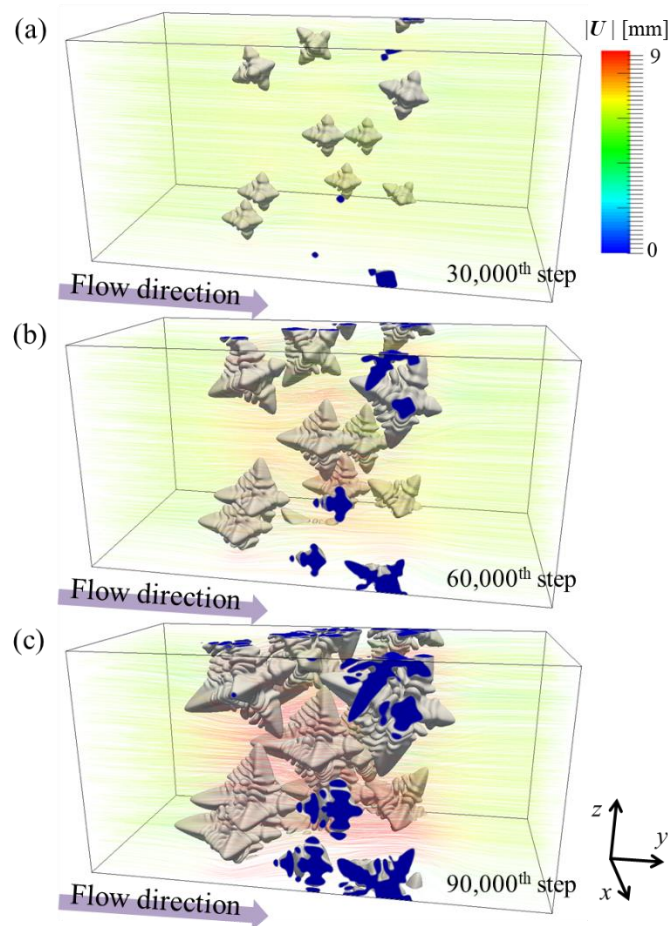


Fig.3.14 Changes in the dendrite morphologies and streamlines during a simulation of multiple dendrite growth in forced convection. The number of meshes is $1,536 \times 1,536 \times 3,072$, and 512 GPUs are used. The computational time for 90,000 steps was about 17 h.

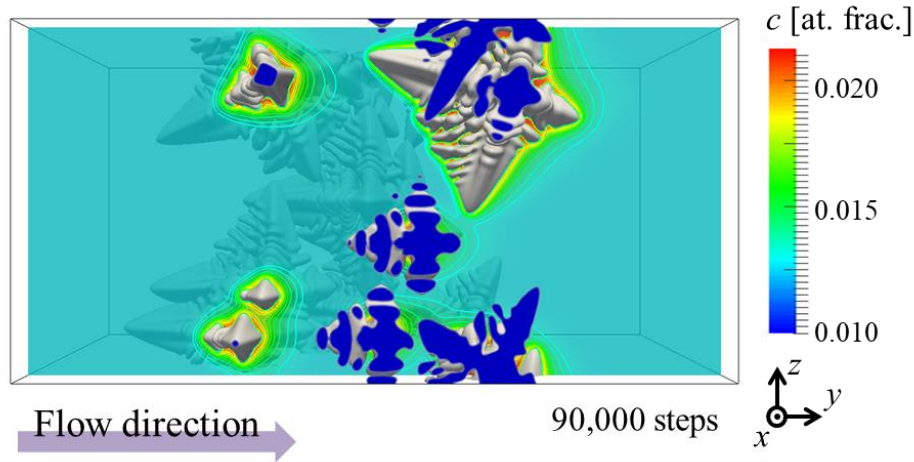


Fig.3.15 Dendrite morphologies and solute concentration on the yz-section at 90,000th step.

ダムな結晶方位を持つ 9 個の固相核を計算領域中央近傍にランダムに配置して計算を開始する．なお，境界条件として， x 方向および z 方向の境界には ϕ , u , $\mathbf{U}$ について周期境界を適用する．また， y 方向の境界条件に関して， ϕ , u は零ノイマン条件， $\mathbf{U}$ は $y = 0$ において流入条件($\mathbf{U} = (0, U_0, 0)^T$)， $y = L_y$ において流出条件($\partial \mathbf{U} / \partial y = (0, 0, 0)^T$)をそれぞれ適用する．また，界面幅は $W_0 = \Delta x / 0.6$ ，流入速度は $U_0 = 6 \text{ mm/s}$ と設定した．計算には 512 GPU を用い，90,000 time steps までの計算に 17 時間を要した．

各時刻におけるデンドライト形態および流線を図 3.14 に示す．図より，開発手法を用いて，強制対流下において複数のデンドライトが同時に成長する現実的な計算が実施可能であることが確認できた．時刻 $t = 30,000\Delta t$ においてデンドライトは相互に干渉することなく成長している．しかしながら，時刻 $t = 60,000\Delta t$ から $90,000\Delta t$ の範囲においてデンドライト同士の相互作用が生じている．また，デンドライト間において流速が上昇する様子も観察できた．図 3.15 に時刻 $t = 90,000\Delta t$ における yz 断面上の溶質濃度分布を示す．図に示すように，上流側で溶質濃度勾配が小さく，下流側で大きくなる様子が確認できる．また，隣接するデンドライトの間で溶質濃度が相互に干渉する様子も観察できる．以上の結果により，本計算に要した計算コストは未だに高いものの，対流下において複数のデンドライトが同時に成長する計算を大規模かつ高速に実施可能であることを示すことができた．

3.5 自然対流を伴う柱状デンドライト成長

(1) 計算条件

本節では，第 3 章 1 節に示した 3 次元フェーズフィールド格子ボルツマンモデルを自然対流を伴う一方向凝固問題に拡張し，自然対流を伴う柱状デンドライト成長の評価を行う．自然対流を伴う一方向凝固問題を取り扱うにあたり，式(3.1)のフェーズフィールド

ド方程式と式(3.3)の格子ボルツマン方程式はそれぞれ次式に拡張する.

$$\tau[1-(1-k)u']\frac{\partial\phi}{\partial t}=\nabla[W^2\nabla\phi]+\sum_{r=x,y,z}\frac{\partial}{\partial r}\left[W\frac{\partial W}{\partial(\partial\phi/\partial r)}|\nabla\phi|^2\right]-f'-\lambda^*g'(u+u') \quad (3.10)$$

$$f_i(\mathbf{x}+\mathbf{c}_i\Delta t,t+\Delta t)=f_i(\mathbf{x},t)-\frac{1}{\tau_{LBM}}\left[f_i(\mathbf{x},t)-f_i^{eq}(\mathbf{x},t)\right]+G_i(\mathbf{x},t)\Delta t+F_i(\mathbf{x},t)\Delta t \quad (3.11)$$

ここで, 式(3.10)は第2章において導出した一方向凝固問題に拡張したフェーズフィールド方程式(式(2.26))である. 式(3.11)は, 式(3.3)の右辺に1次精度離散外力項 $F_i=3w_i\rho\mathbf{c}_i\cdot\mathbf{F}$ を追加した式である. ここで, $\mathbf{F}$ は不均一な溶質濃度や温度によって生じる浮力であり, 次式で表される.

$$\mathbf{F}=-\rho_0\mathbf{g}\cdot\frac{1-\phi}{2}\cdot[\beta_C(C-C_0)+\beta_T(T-T_0)] \quad (3.12)$$

ここで, $\mathbf{g}$ は重力ベクトルであり, 2次元計算において $\mathbf{g}=(0, g)^T$, 3次元計算において $\mathbf{g}=(0, 0, g)^T$ とする. また, ρ_0 は基準密度, T_0 は基準温度, C_0 は基準濃度, β_C は溶質膨

Table 3.4 Material parameters and computational conditions.

Parameter	Variable	Value	Reference
Initial concentration (at. frac.)	C_0	0.013	
Pulling velocity ($\mu\text{m/s}$)	V_p	100	
Temperature gradient (K/mm)	G	50	
Mesh size (μm)	Δx	0.75	
Interface thickness (μm)	W_0	0.9375	
Time increment (s)	Δt	9.375×10^{-6}	
Melting temperature of pure Al (K)	T_m	933.3	[162]
Slope of liquidus line (K/at. frac.)	m	-620	[163]
Diffusivity in liquid (m^2/s)	D_l	3.0×10^{-9}	[164]
Diffusivity in solid (m^2/s)	D_s	3.0×10^{-13}	[164]
Partition coefficient (-)	k	0.14	[164]
Gibbs-Thomson constant (Km)	Γ	0.24×10^{-6}	[165]
Anisotropic strength (-)	ε_4	0.02	
Kinetic viscosity (m^2/s)	ν	1.0×10^{-8}	
Solutal expansion coefficient (/at. frac.)	β_C	-2	[187]

張係数, β_T は熱膨張係数である. 本節では, 簡単のため熱による浮力は無視し, $\beta_T = 0$ とする. それ以外の式については第3章1節に示す数値モデルと同様のものを用いる.

図3.16に2次元計算と3次元計算の計算領域を示す. 2次元計算と3次元計算でそれぞれ $3.072 \times 6.144 \text{ mm}^2$ および $0.384 \times 0.384 \times 1.536 \text{ mm}^3$ の領域を $4,096 \times 8,192$ および $512 \times 512 \times 2,048$ の格子に分割する. 2次元計算の場合はx方向に, 3次元計算の場合はx方向とy方向にそれぞれ周期境界条件を適用する. 計算領域の上端と下端には, ϕ と u について零ノイマン境界条件を, $\mathbf{U}$ については滑りなし境界条件をそれぞれ適用する. 材料物性には Al-3wt%Cuを用い, 計算領域底面における初期過冷却度 u_0 を $u_0 = -0.3$ ($T = 922.39 \text{ K}$)と設定する. 2次元計算の開始時には10個の固相核を計算領域底面にランダムに配置した. 一方, 3次元計算の開始時には, 計算領域中央に1個の固相核を配置した. 本計算では, 後述する $g = -g_0$ における3次元計算を除き, 十分な数のデンドライトが広い領域内に生成されるため, 初期核配置の影響は小さいと考えられる. 計算に用いる物性値および計算パラメータを表3.4に示す. ここで, 計算を安定かつ効率的に行うため, τ_{LBM} を1とし, 動粘性係数 ν に実験測定値[184]の1/30の値を用いた. 一方向凝固において, 温度勾配 G と引抜速度 V_p はそれぞれ $G = 50 \text{ K/mm}$ および $V_p = 100 \text{ } \mu\text{m/s}$ と設定する. 自然対流がデンドライト先端の過冷却度に与える影響は小さいので, 第2章の計算に用いた格子幅 $\Delta x = 0.75 \text{ } \mu\text{m}$ を本計算でも用いる. さらに, 重力加速度は2次元計算において $g = -g_0, -g_0/5, -g_0/10, -g_0/20, -g_0/30, 0, g_0/30, g_0/20, g_0/10, g_0/5, g_0$, 3次元計算において $g = -g_0, -g_0/5, -g_0/10, -g_0/20, 0, g_0/20, g_0/10, g_0/5, g_0$ と変えて計算を行う. ここで, $g_0 = 9.80665 \text{ m/s}^2$ である. g の小さい範

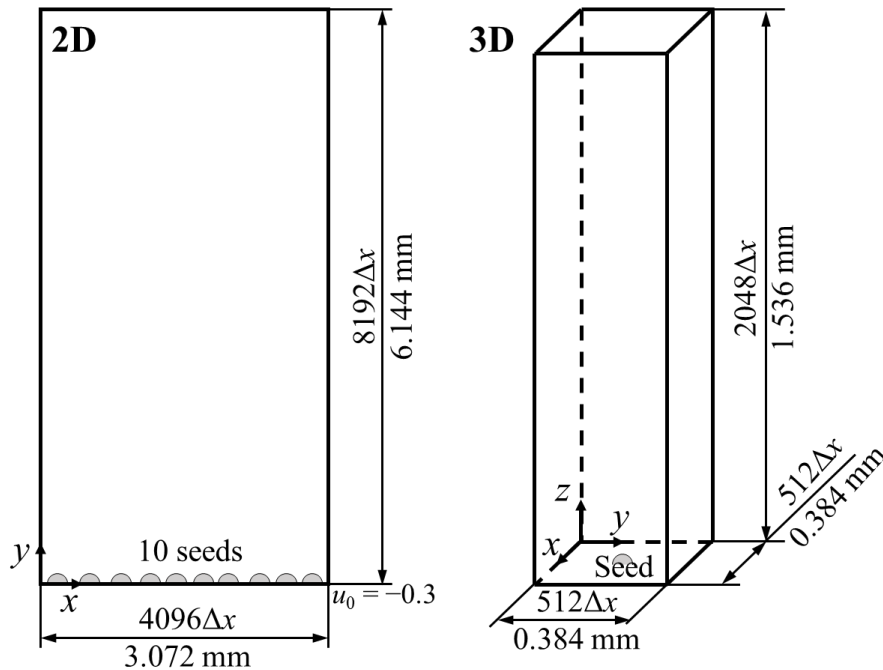


Fig.3.16 Computational domains for 2D and 3D simulations.

図において値を変化させているのは、実物性よりも小さい動粘性係数を用いた計算においてレイリー数を調整するためである。Al-3wt%Cuの上向きの一方向凝固において、負の重力は下降流を引き起こし、正の重力は上昇流を引き起こす。2次元計算と3次元計算はそれぞれ複数GPU並列計算によって32 GPUと128 GPUを用いて実施された。計算実行時間に関して、2次元計算では 6×10^6 time stepsの計算に約55時間、3次元計算では 1.5×10^6 time stepsの計算に95時間要した。

(2) デンドライト形態と流れの形態

図3.17に2次元計算における重力加速度が $g = (a) -g_0, (b) -g_0/20, (c) 0, (d) g_0/20, (e) g_0/10$ の場合の時刻 4.5×10^6 step ($t = 42.19$ s)のデンドライト形態および液相の溶質濃度を示している。図3.18に図3.17(b)と図3.17(d)に白枠で示す $g = -g_0/20, g_0/20$ におけるデンドライト先端付近の拡大図を示す。各 g の値を用いた計算において得られた一次枝の数 N_p と平均一次枝間隔 λ_{ave} 、平均一次枝先端過冷度 ΔT_{ave} を表3.5に示す。対流がない場合($g = 0$)の溶質拡散のみの成長条件において、図3.17(c)に示すようにデンドライト一次枝の数は25本になった。重力が下向きに作用する場合、図3.17(a), (b)および表3.5で見られるように N_p は g が強くなるほど単調に減少した。Cuの濃度が高い液相は低い液相よりも重いため、下向きの g は図3.18(a)に示すようにデンドライト先端前方に下降流を生じさせる。下降流は、デンドライト先端近傍の溶質濃度の高い溶液を隣接する成長の遅れているデンドライト先端へと届けるため、淘汰が起こりやすくなる。その結果、 g が強くなるほどデンドライト一次枝間隔 λ が単調に増加した。さらに、 g が下向きの場合、下降流は二次枝の成長を促進した。この二次枝の成長促進は、一次枝間隔の増加と一次枝幹に沿った液相流動によって引き起こされる。図3.17(d)の $g = g_0/20$ の場合において $N_p = 32$ となり、 g が上向きの場合に λ が減少する様子が見られた。 g が上向きの場合、図3.18(b)に示すように

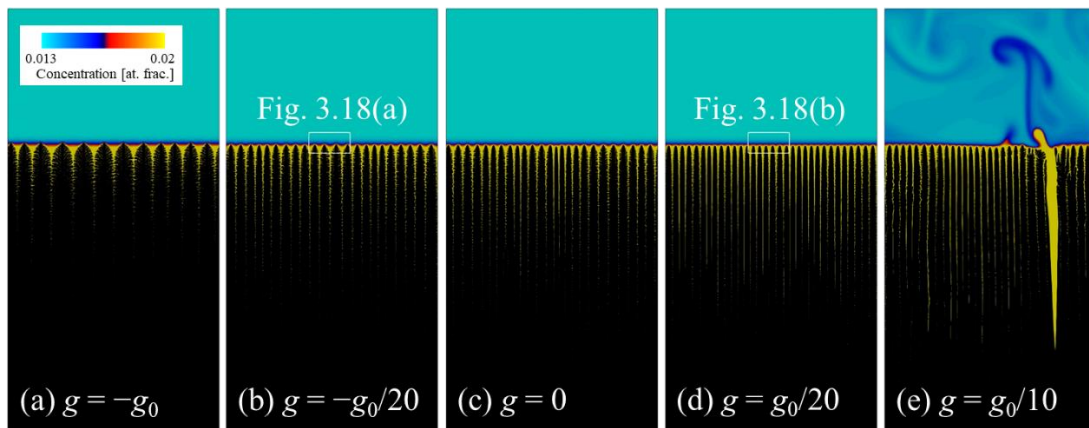


Fig.3.17 Dendrite morphologies (black region with $\phi > 0$) and solute concentration distributions in liquid (colored region) at 4.5×10^6 th step ($t = 42.19$ s) for 2D simulations with $g = (a) -g_0, (b) -g_0/20, (c) 0, (d) g_0/20$ and $(e) g_0/10$.

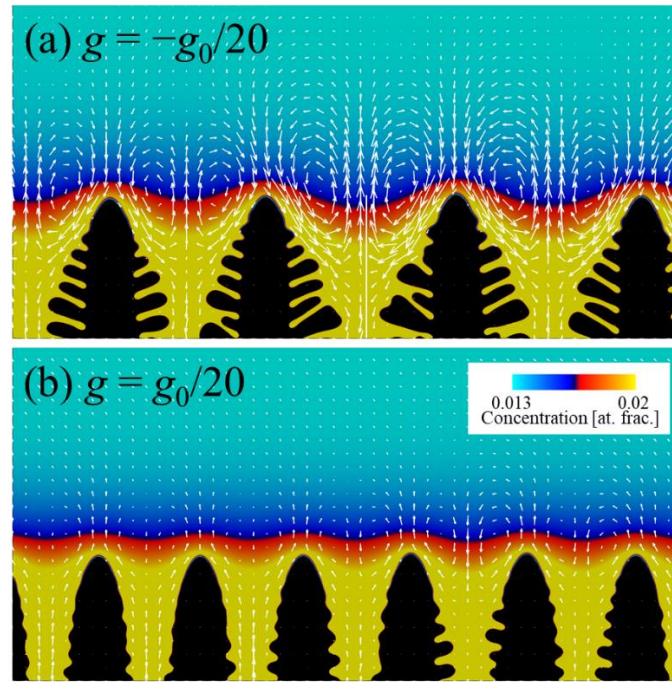


Fig.3.18 Enlarged views of white rectangular regions ($600 \times 300 \mu\text{m}^2$) drawn in Fig. 1(b), (d) for $g =$ (a) $-g_0/20$ and (b) $g_0/20$. Liquid flow patterns are indicated by white arrows. The maximum flow rates in these regions are $20.24 \mu\text{m/s}$ and $8.57 \mu\text{m/s}$ for (a) and (b), respectively.

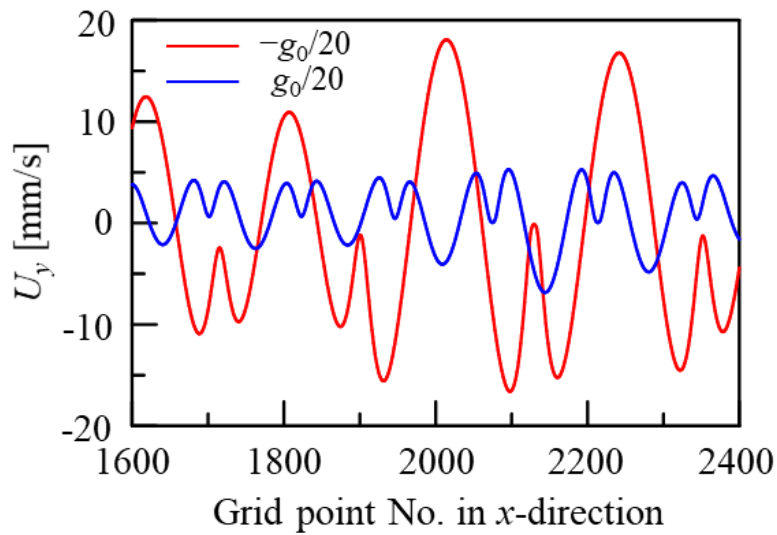


Fig.3.19 Changes in the y -direction component of flow velocity, U_y , along the horizontal lines with $n_y = 5571$ and 5551 , the grid point number in the y -direction which is five grids above the leading tip, for $g = -g_0/20$ and $g_0/20$, respectively. The display region in the x -direction corresponds to that in Fig. 3.18.

デンドライト先端近傍において上昇流が引き起こされた．図3.19に $g = -g_0/20$ と $g = g_0/20$ の計算におけるデンドライト先端位置の5格子上($n_y = 5,571, 5,551$)を通る水平線上の y 方向流速 U_y の分布を示す．ここで，図3.19の横軸の範囲は図3.18の拡大領域横幅に対応している．水平線上の最大上昇流速と最大下降流速は $g = -g_0/20$ において $18.1 \mu\text{m/s}$ と $-16.6 \mu\text{m/s}$ ， $g = g_0/20$ において $6.29 \mu\text{m/s}$ と $-8.04 \mu\text{m/s}$ であり， $g = -g_0/20$ におけるデンドライト先端前方の最大下降流速は $g = g_0/20$ における最大上昇流速の約3倍であった．図3.17(e)に示すように上昇流が強くなると，流れが不安定になりフレッケル凝固欠陥が生じる様子が確認できた．図3.17(e)のフレッケル欠陥は一次枝が淘汰された箇所から生じている．2次元計算において見られたこれらの現象は，先行研究において報告された現象と酷似している[102]．

図3.20に3次元計算における $g = (a) -g_0, (b) -g_0/10, (c) 0, (d) g_0/10, (e) g_0$ の場合の時刻 1.5×10^6 step ($t = 14.06 \text{ s}$)のデンドライト形態($\phi = 0$ の等高面)と2つの領域境界面上における溶質濃度分布をそれぞれ示している．各 g の値を用いた計算で得られた N_p と λ_{ave} ， ΔT_{ave} を表3.5に示す．図3.20(c)に示す $g = 0$ の純拡散条件において $N_p = 33$ であった．図3.20(a), (b)に示す $\mathbf{g}$ が下向きの場合において， $g = -g_0/10$ では $N_p = 29$ ， $g = -g_0$ では $N_p = 23$ まで一次枝の数が減少した．この時，2次元計算と同様に， $\mathbf{g}$ が強いほど二次枝の成長が促進された．図3.20(d)に示す $g = g_0/10$ の計算では， N_p は $g = 0$ の場合と同じであり， $g = 0$ と $g = g_0/10$ の場合のデンドライト形態に特に大きな違いは見られなかった．一方で，図3.20(e)に示す凝固形態について，他の計算とは大きく異なる結果が得られた．図3.20(e)の $g = g_0$ の計算に

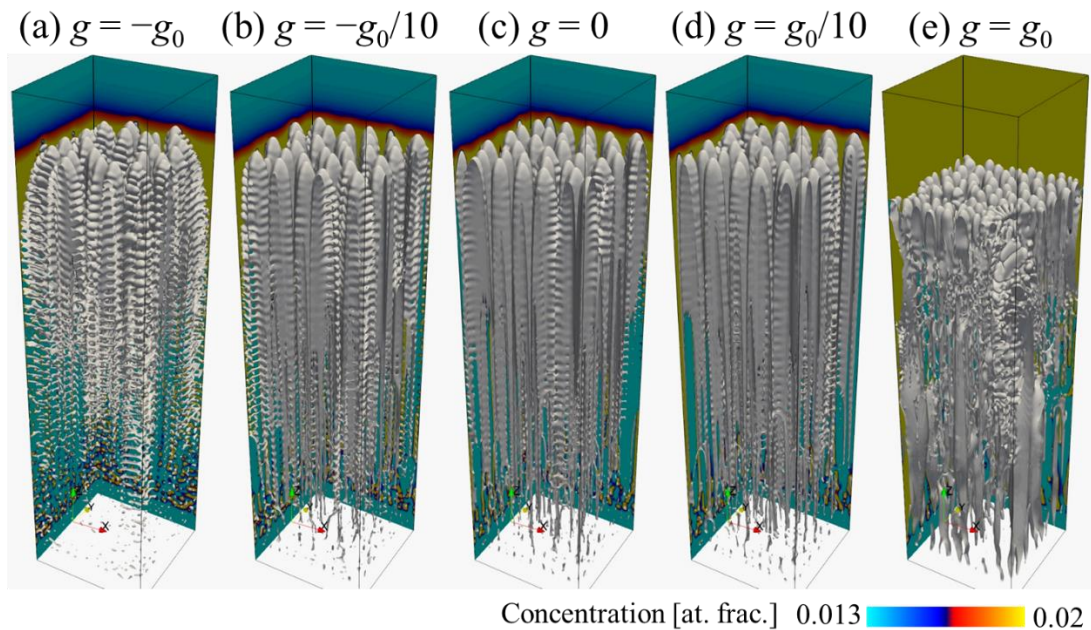


Fig.3.20 Dendrite morphologies (gray isosurface with $\phi = 0$) and solute concentration distributions on the two boundaries at 1.5×10^6 step ($t = 14.06 \text{ s}$) for 3D simulations.

において、デンドライト先端近傍の成長が不安定化し、上向きの柱状流れおよびフレックセル凝固欠陥が計算領域の角部分に発生している。これと同様の傾向が図3.17(e)に示す2次元計算でも見られた。ここで、図3.20(a)に示すデンドライト形態について初期核配置と計算領域サイズに強く影響を受けている様子が見られた。また、図3.20(e)において、デンドライト先端前方に溜まった溶質濃度の高い溶液によってデンドライトの成長が止められている。これは、計算領域サイズが成長挙動に影響を与えることを意味している。一方、図3.20(b)–(d)の重力が0付近の計算では、デンドライト形態は初期核配置や計

Table 3.5 The number of primary arms N_p (upper), the average primary arm spacing λ_{ave} [μm] (middle) and the average tip undercooling ΔT_{ave} [K] (lower) at $4.5 \times 10^{6\text{th}}$ step ($t = 42.19$ s) for 2D and at $1.5 \times 10^{6\text{th}}$ step ($t = 14.06$ s) for 3D simulations.

		$-g_0$	$-g_0/5$	$-g_0/10$	$-g_0/20$	$-g_0/30$	0	$g_0/30$	$g_0/20$	$g_0/10$	$g_0/5$
2D	N_p	12	19	21	22	25	25	30	32	29	
	λ_{ave} [μm]	256.0	161.7	146.3	139.6	122.9	122.9	102.4	96.0	105.9	
	ΔT_{ave} [K]	3.61	4.53	4.86	5.05	5.24	5.36	5.58	5.68	5.87	
3D	N_p	23	27	29	30		33		31	33	30
	λ_{ave} [μm]	90.8	82.2	78.8	76.9		73.8		75.9	73.2	76.5
	ΔT_{ave} [K]	3.36	3.64	3.73	3.78		3.82		3.79	3.86	4.78

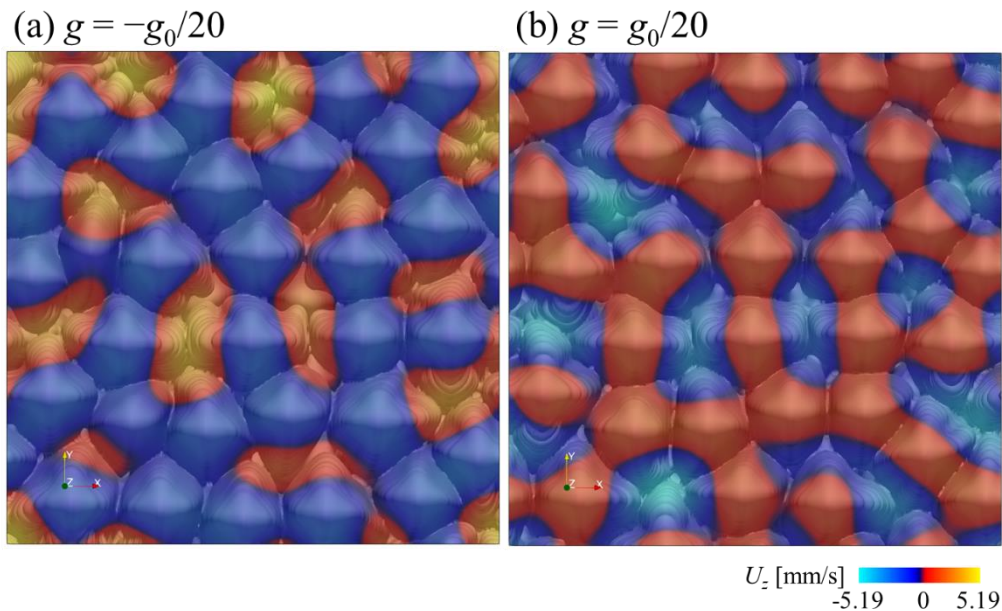


Fig.3.21 Top views of the dendrite morphologies (gray isosurface with $\phi = 0$) and the distributions of flow velocities in the z -direction, U_z , on the z -plane with $n_z = 1860$ at $1.5 \times 10^{6\text{th}}$ step ($t = 14.06$ s) for $g = (a) -g_0/20$ and $(b) g_0/20$.

算領域サイズに影響を受けていないように見える．図3.21に $g = (a) -g_0/20, (b) g_0/20$ の計算の時刻 1.5×10^6 step ($t = 14.06$ s)における上面図をそれぞれ示す．ここで，図中の色は，デンドライト先端位置から5格子上的 x - y 平面($n_z = 1860$)上の z 方向流速 U_z の分布を示す．図3.21(a)の下向き重力 $g = -g_0/20$ の場合において，デンドライト間に複数の孤立した上昇流領域が見られた．下降流領域はデンドライト先端上方に位置しており，上昇流領域を取り囲むように配置されている．また，上昇流領域が生じる位置のデンドライト間隔は下降流が生じる領域におけるデンドライト間隔よりも広がっている．図3.21(b)の上向き重力 $g = g_0/20$ の場合において，図3.21(a)で見られる流速分布と正負反対の流速形態が得られた．図3.21(b)の流速分布はラメラ状の形態を示した．ここで，図中において見られる孤立した下降流領域の形態は図3.21(a)の上昇流領域の場合とわずかに異なる． x - y 平面上の U_z の最大上昇流速および最大下降流速は図3.21(a)の $g = -g_0/20$ において $5.19 \mu\text{m/s}$ と $-2.51 \mu\text{m/s}$ ，図3.21(b)の $g = g_0/20$ において $2.13 \mu\text{m/s}$ と $-5.06 \mu\text{m/s}$ であった．これらの3次元計算における最大上昇流速と最大下降流速は2次元計算の場合と比べて小さい．これは，2次元と3次元におけるデンドライト近傍の濃度差によると考えられる．

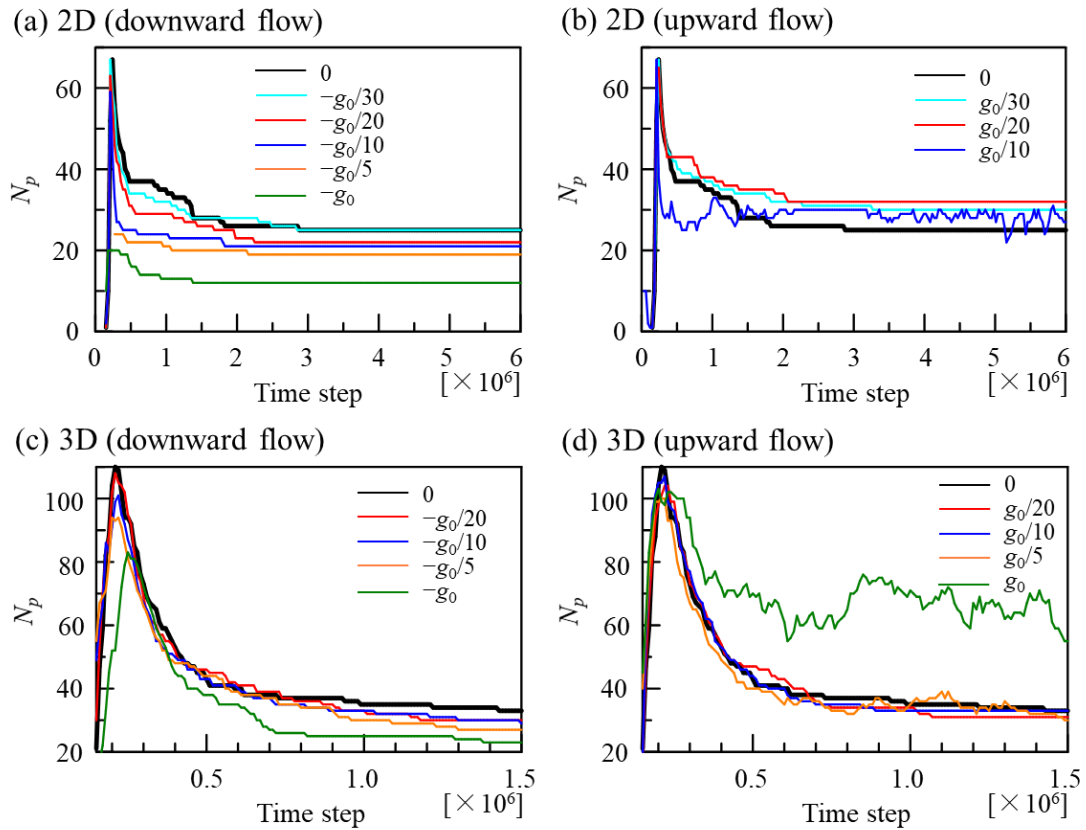


Fig.3.22 Variations in the number of primary arms, N_p .

(3) 一次枝間隔

図3.22と図3.23に一次枝の数 N_p と平均一次枝間隔 λ_{ave} の時間変化を示す．3次元計算において，一次枝間隔 λ は第2章4節1項と同様にボロノイ分割を用いて算出する．両図において，(a), (b)は2次元計算の結果を，(c), (d)は3次元計算の結果をそれぞれ示す．また，(a), (c)が下降流に，(b), (d)が上昇流にそれぞれ対応する．これらの図より，2次元計算において不安定な上昇流が生じる場合を除き，定常成長状態を達成している様子が確認できる．一方で，3次元計算においては定常成長状態を達成できていない．2次元計算の時刻 4.5×10^6 step ($t = 42.19$ s)と3次元計算の時刻 1.5×10^6 step ($t = 14.06$ s)における N_p と λ_{ave} , ΔT_{ave} の値を表3.5にまとめている．

図3.22(a), (c)に示す下降流の場合の2次元計算と3次元計算の両方で， N_p の値は計算開始時に最大値を取り， g が強いほど計算最終時刻における N_p の値がほぼ単調に小さくなる様子が確認できた．図3.22(a)と図3.23(a)に示す2次元計算の結果より， g が強いほど早い時刻に定常成長状態を達成している．これは，2次元計算において下降流がデンドライト成長を安定させるように作用することを示している．図3.22(c)に示す3次元計算では， g が強いほど計算開始直後に見られる N_p の最大値は小さくなっている．なお， g の変

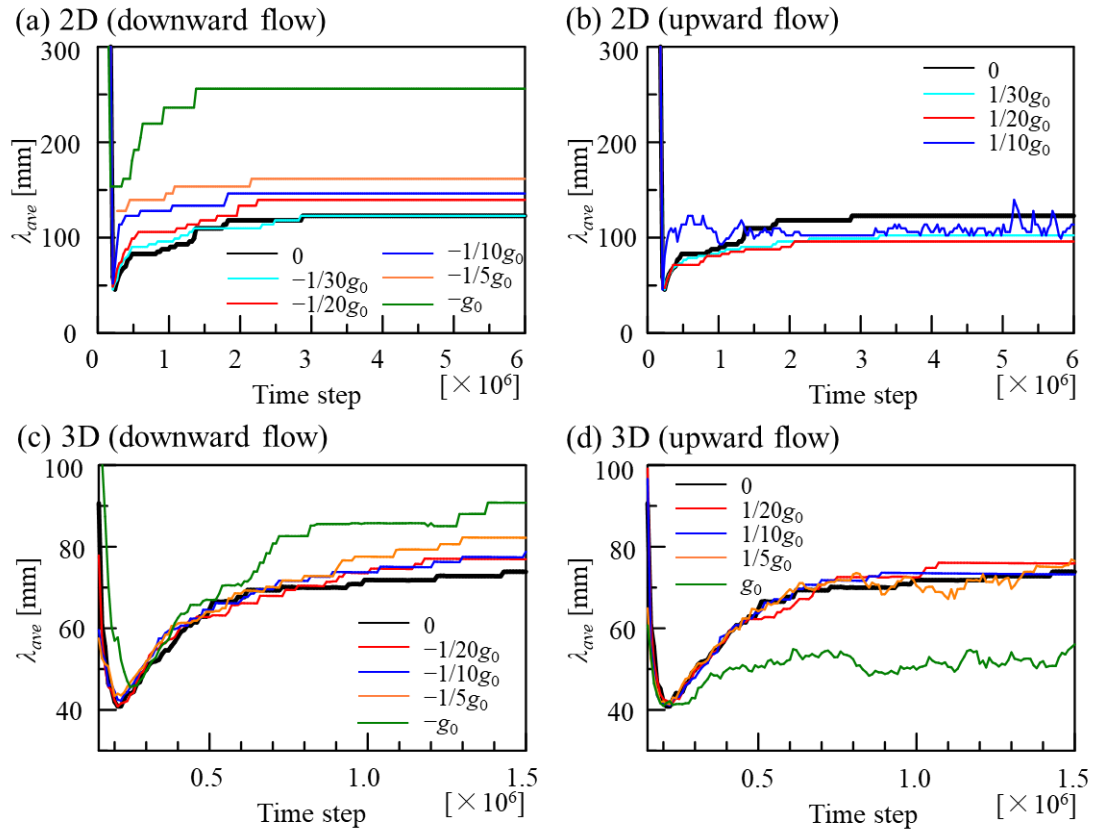


Fig.3.23 Variations in the average primary arm spacing, λ_{ave} . In the 3D simulations, the primary arm spacing was computed by using Voronoi tessellation.

化による N_p の最大値の変化域は、2次元計算の場合よりも小さい。図3.22(a)の2次元計算では、 N_p が最大のピークを取った後の時間変化について、 g の値ごとに大きな違いは見られなかった。また、図3.22(c)と図3.23(c)の3次元計算の結果では、 $g = -g_0$ の場合のみ、計算初期において N_p が急激に減少した後、 N_p と λ_{ave} が長時間変化しない区間が見られた。この区間において、デンドライトは図3.20に示すような計算領域中央と角にデンドライトが配置されない不規則な配列のまま成長を続けている。

図3.22(b), (d)と図3.23(b), (d)に示す上昇流の場合の結果では、2次元計算の場合は $g = g_0/10$ 以上、3次元計算の場合は $g = g_0/5$ 以上の g の値においてデンドライトの成長が不安定化する。不安定な上昇流が生じる g の範囲において、図3.17(e)と図3.20(e)に示すような上向きの柱状流れが水平方向に移動することで N_p と λ_{ave} の振動が生じている。2次元計算のデンドライトが安定に成長する g の範囲において、 g が強いほど定常成長状態における N_p の値は大きくなり、 λ_{ave} の値は小さくなった。一方で、3次元計算の安定成長を示す g の範囲においては、図3.22(d)と図3.23(d)に示すように自然対流による影響がほとんど見られない。

図3.24に一次枝間隔 λ の標準偏差 S_λ と平均値 λ_{ave} の比 S_λ/λ_{ave} の時間変化を示す。2次元計算

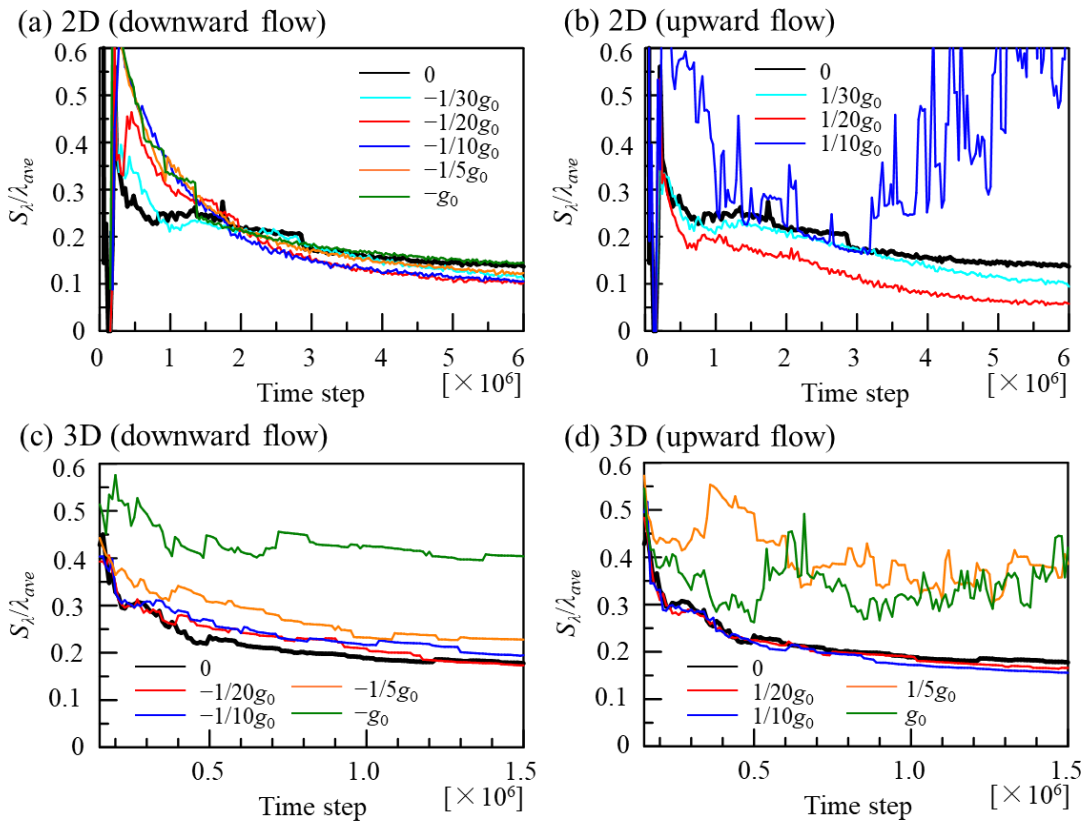


Fig.3.24 Variations of the ratio S_λ/λ_{ave} of the standard deviation of primary arm spacing, S_λ , to the average primary arm spacing, λ_{ave} .

においてデンドライトが安定に成長する g の範囲では、図3.24(a), (b)に示すように、 $g=0$ の純拡散条件の計算と比べて自然対流を伴う場合の最終時刻近傍における S_i/λ_{ave} の値が小さくなる。これは、2次元計算において自然対流は一次枝間隔が均一になるように作用することを意味している。一方で、上昇流と下降流の場合双方で S_i/λ_{ave} の変化の傾向は異なる。図3.24(a)に示す下降流の場合、 g が強くなるほど計算初期に S_i/λ_{ave} が大きなピークを取り、その後、逆に g が弱くなるほど S_i/λ_{ave} が早く減少する。この時、最終時刻近傍における S_i/λ_{ave} の値は g の値に応じた単調な変化にはならなかった。 S_i/λ_{ave} の値は $g = -g_0/20$ と $g = -g_0/10$ において最小となり、 $g = -g_0$ の場合の S_i/λ_{ave} の値が $g = 0$ の場合の値よりもわずかに大きくかつ最大となった。一方で、図3.24(b)の上昇流の結果では、 $g = g_0/10$ の不安定な g の範囲における計算結果を除き、 g が強くなるほど S_i/λ_{ave} の値が減少している。図3.24(c)に示す3次元計算の下降流の結果では、 g が強くなるほど S_i/λ_{ave} の値が大きくなった。これは、3次元計算における下降流はデンドライト配列を定常化させるが、それは一次枝間隔を均一にするようには作用しないことを意味している。また、図3.24(d)の3次元計算の安定な上昇流の範囲では、 g が強くなるほど S_i/λ_{ave} の値が僅かに小さくなるが、この変化はほぼ無視できる程度に小さい。

2次元計算の時刻 4.5×10^{6th} step ($t = 42.19$ s)と3次元計算の時刻 1.5×10^{6th} step ($t = 14.06$ s)における平均一次枝間隔 λ_{ave} について、 g の値に対する変化を図3.25に示している。なお、図中において、横軸と縦軸はそれぞれ g_0 と $g = 0$ の場合の平均一次枝間隔 λ_0 を用いて正規化している。また、誤差範囲として $\pm S_i/\lambda_{ave}$ の範囲を示している。前述のように、2次元計算では $g/g_0 \geq 1/10$ 、3次元計算では $g/g_0 \geq 1/5$ の範囲において上昇流が不安定なデンドライ

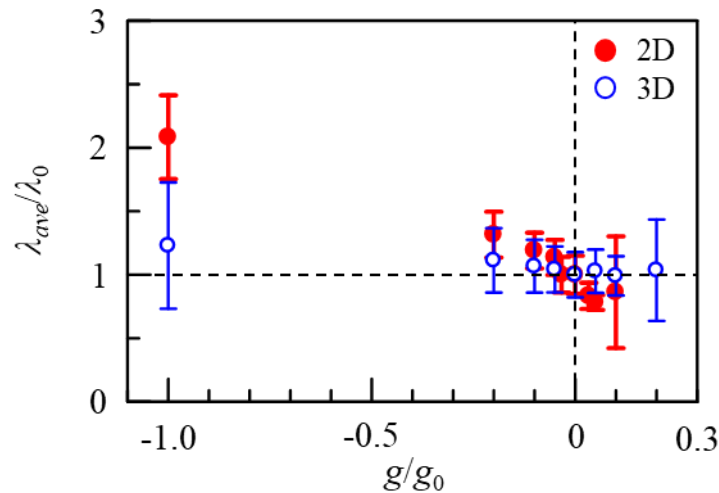


Fig.3.25 Variations in the ratio λ_{ave}/λ_0 with error bar of standard deviation, $\pm S_i/\lambda_0$, as a function of the gravity g/g_0 at 4.5×10^{6th} step ($t = 42.19$ s) for the 2D case and 1.5×10^{6th} step ($t = 14.06$ s) for the 3D case, where λ_0 is the value of λ_{ave} for $g = 0$. $\lambda_0 = 122.9 \mu\text{m}$ and $73.84 \mu\text{m}$ for the 2D and 3D cases, respectively.

ト成長を引き起こした．不安定成長を示す g の範囲を除いて，2次元計算の場合では， g が小さいほど λ_{ave}/λ_0 の値は単調に増加した．3次元計算の場合では， g が正の範囲においては λ_{ave}/λ_0 の値はほぼ一定であり，負の範囲では g が小さいほど λ_{ave}/λ_0 が単調に増加した． g に対する λ_{ave}/λ_0 の依存性は3次元計算よりも2次元計算の方が顕著に確認でき，一方向凝固中の重力の影響は3次元計算よりも2次元計算において強くなると結論付けられる．

3.6 デンドライト樹間の透過率評価計算

マクロ偏析の予測計算[188-191]において，凝固中の固液共存領域における流動は透過率を用いて決定される．透過率はデンドライト樹間領域のような多孔質構造内の液相の流れ易さの指標として用いられる．透過率 K はダルシー則より次式で与えられる．

$$\bar{U} = -\frac{1}{\mu} K \nabla \bar{P} \quad (3.13)$$

ここで， $\nabla \bar{P}$ は平均圧力勾配， $\bar{U}$ は平均流速， $\mu = \rho \nu$ は粘性係数である．本節では，開発した大規模計算手法を応用して，第2章4節1項に示すフェーズフィールド凝固計算より得られた柱状デンドライト凝固組織内部の流体の透過率を高精度に評価する手法を構築する．

柱状デンドライト樹間の透過率評価手順は以下の通りである．まず，デンドライト成長計算より得られた凝固組織のフェーズフィールド分布を用いて，領域内に一定の圧力勾配下を与えた際の液相内の定常流れ時の流速を計算する．ここで，凝固組織内の流れ場の計算には次式の格子ボルツマン方程式を用いる．

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_{LBM}} \left[f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{eq}(\mathbf{x}, t) \right] + G_i(\mathbf{x}, t) \Delta t + E_i(\mathbf{x}, t) \Delta t \quad (3.14)$$

この式は，第3章1節の式(3.3)に圧力勾配 $\nabla \bar{P}$ によって生じる外力をモデル化した1次精度離散外力項 $E_i = 3w_i \rho \mathbf{c}_i \cdot \nabla \bar{P}$ を加えた式である．式(3.14)の計算により得られた定常流れ時の圧力勾配方向の平均流速 $\bar{U}$ を算出し，ダルシー則に基づき圧力勾配方向の透過率 $K = -\mu \bar{U} / |\nabla \bar{P}|$ を計算する．

本計算手法の利点は次の通りである．まず，フェーズフィールド凝固計算によって，滑らかな固液界面で表現された詳細な凝固組織の形態情報が得られる．また，複雑な凝固組織形態を空間で離散化したフェーズフィールド変数の分布を用いて表現しているため，フェーズフィールド計算に用いた計算格子をそのまま流体計算に使うことが可能であり流体計算のために特別に計算格子を用意する必要がない．さらに，流体計算において領域内に均等な圧力勾配を作用させるため，本手法では周期構造および周期境界を用いた計算が可能であ

る．これは，本研究において示す x 方向や y 方向の透過率だけでなく，異方性を有する凝固組織に対して任意の方向の透過率評価が可能であることを意味する．

(1) 妥当性評価

開発手法の妥当性評価のため，周期的に配列された円柱間の垂直方向流れに関する透過率評価を行う．図 3.26 に算出した透過率を固相率 $f_s = V_v/V$ の関数として示す．ここで V と V_v はそれぞれ計算領域体積と固相体積である．図中に(a)四角形配列と(b)正六角形配列の円柱についての結果をそれぞれ示す．計算には四角形配列と正六角形配列についてそれぞれ $126\Delta x \times 126\Delta x$ と $126\Delta x \times 220\Delta x$ の2次元計算領域を用いた．固体円柱を表現する ϕ の分布は平衡分布より $\phi(r) = -\tanh((r - R)/(\sqrt{2} W_0))$ とした．ここで， r は円柱中心からの距離， R は円柱半径であり，界面幅 W_0 は $\Delta x/W_0 = 0.8$ とした．空間を Δx ，時間を Δt ，密度を ρ_l で無次元化した圧力勾配 1×10^{-5} を x 方向と y 方向にそれぞれ与えて周期境界条件の下，流体計算を行った．比較のため，Edwards ら[192]と Sangani ら[193]による結果も図 3.26 に示す．透過率は計算領域面積 A で無次元化した値を示している．図 3.26 に示すように，本計算より得られた結果は Edwards ら[192]と Sangani ら[193]の結果とよく一致しており，開発した透過率予測手法の妥当性を確認できた．一方で， f_s が増加するのに伴い，四角形配列では $f_s \geq 0.7$ ，正六角形配列では $f_s \geq 0.8$ の範囲において，結果の不一致が見られた．これは， f_s が大きい場合に隣接する円柱同士の拡散界面

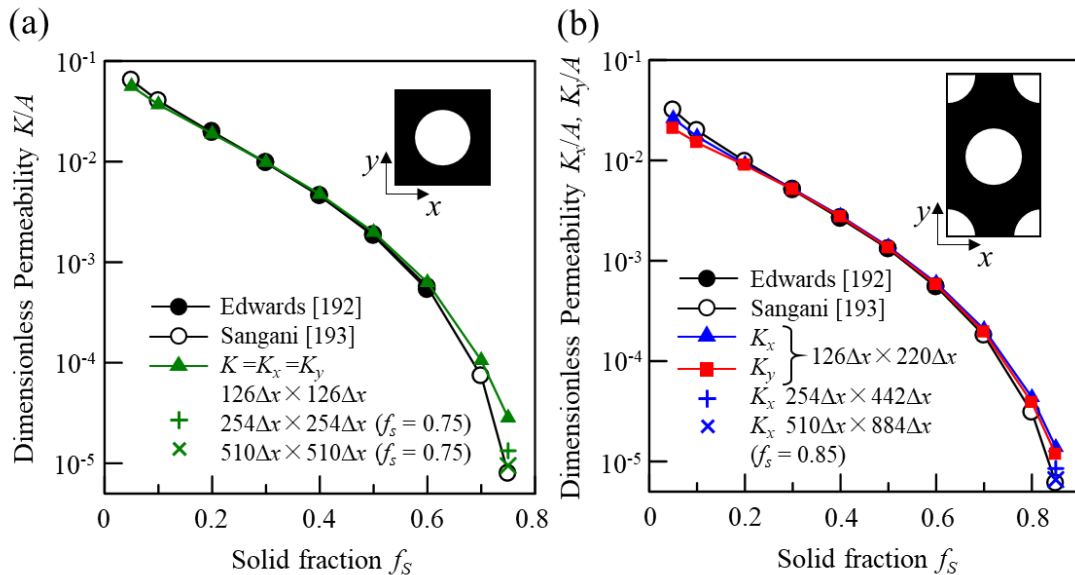


Fig.3.26 Variations of dimensionless permeability as a function of solid fraction f_s for (a) square and (b) regular hexagonal array of cylinders. Upper-right figures inserted in (a) and (b) are the computational domains, where the black and white regions indicate liquid and solid, respectively. Only for the highest f_s , K_x/A for double and four times resolutions are shown.

が相互に干渉することで生じた問題である．本透過率評価における空間解像度は、後述する凝固組織に対する透過率評価において用いられた空間解像度に準じて設定した．より高い空間解像度を用いればより高精度な結果が得られる．2 倍および 4 倍の空間解像度を用いて実施した $f_s = 0.75$ における四角形配列および $f_s = 0.85$ における正六角形配列の透過率評価結果をそれぞれ図 3.26 に示す．図より、高い空間解像度を用いるほど、算出した無次元透過率 K/A の値が正しい値に近づくことが分かる．また、 f_s が小さい領域においても計算結果が僅かにずれる様子が見られる．この領域において、本計算におけるレイノルズ数 Re は比較的大きく約 10 程度であるのに対して、Edwards らと Sangani らの結果は $Re = 0$ として算出されているのが誤差の原因である．

(2) 複数デンドライト/セルで構成される柱状凝固組織

開発した透過率評価手法を用いて、単結晶の複数デンドライト/セルで構成された柱状凝固組織に対する垂直方向流れの透過率を評価する．ここで、評価対象として、第 2 章 4 節 1 項において実施した単結晶一方向凝固計算より得られた組織構造を用いる．

第 2 章 4 節 1 項において、単結晶の大規模一方向凝固計算を実施し、デンドライト構造とセル構造の両方で六角形配列が支配的な配列であると結論付けた．この計算において、デンドライト形態からセル形態までの評価を行うために、引抜速度 $V_p = 100 \mu\text{m/s}$ の下、異なる 6 種類の温度勾配 $G = 5, 10, 20, 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ が用いられた．各計算は 1×10^7 steps ($t = 267.9 \text{ s}$) までの計算を $G = 5 \text{ K/mm}$ において $1,536 \times 1,536 \times 1,024$ 格子 ($1.151 \times 1.151 \times 0.768 \text{ mm}^3$)、 $G = 10, 20, 50, 100, 200 \text{ K/mm}$ において $1,024^3$ 格子 ($0.767 \times 0.767 \times 0.768 \text{ mm}^3$) の広い領域を用いて実施された．ここでは、 $G = 5, 10, 20, 50, 100 \text{ K/mm}$ のデンドライト/セル構造の成長方向に対して垂直な方向の流れの透過率評価を行う．各一方向凝固計算の結果より、 $G = 5 \text{ K/mm}$ では $1,536 \times 1,536 \times 512$ 格子、 $G = 10, 20 \text{ K/mm}$ では $1,024 \times 1,024 \times 512$ 格子、 $G = 50, 100 \text{ K/mm}$ では $1,024 \times 1,024 \times 612$ 格子の範囲のフェーズフィールド分布を固液共存領域として抜き出す．その後、抜き出した領域に対して、無次元圧力勾配 1×10^{-5} を x 方向に設定し、定常流れ状態を達成するまで格子ボルツマン方程式を解く．境界条件として x 方向と y 方向に周期境界条件を適用し、 z 方向に滑り条件を適用する．

図 3.27 に一方向凝固計算の時刻 1×10^7 th time step における結果から抜き出した固液共存領域の上面図および側面図を示す．図 3.27(a) に示すように $G = 5 \text{ K/mm}$ においては明らかなデンドライト構造が観察された．また、 G の増加に伴いデンドライト形態からセル形態へと遷移する様子も確認できる．図 3.28 に図 3.27 の凝固組織に対して行った格子ボルツマン計算の結果を示す．ここで、 G が小さいほど流速が速く、領域上部における流れが真っ直ぐになる様子が見られた．これは、 G が小さいほど一次枝間隔が広くなるからである．

図 3.29 に計算領域内の z 位置ごとの固相率 f_s , 固液界面の表面積 A_{SL} , x 方向透過率 K_x の変化をそれぞれ示す. これらの値は各 z 方向格子点位置における厚さ 1 格子分の x - y 平面内の値として算出する. このとき, 多数の一次枝が成長する大規模計算の結果を用いているため, 各 z 方向位置における高さ方向 1 格子分の平均流速をそのまま透過率評価に用いることができる. 固相率 $f_s = V_s/V$ の算出に必要な固相の体積 V_s は $\phi \geq 0$ の格子点数から算出される. 固液界面の表面積 A_{SL} は複雑な凝固組織構造を特徴付ける積分

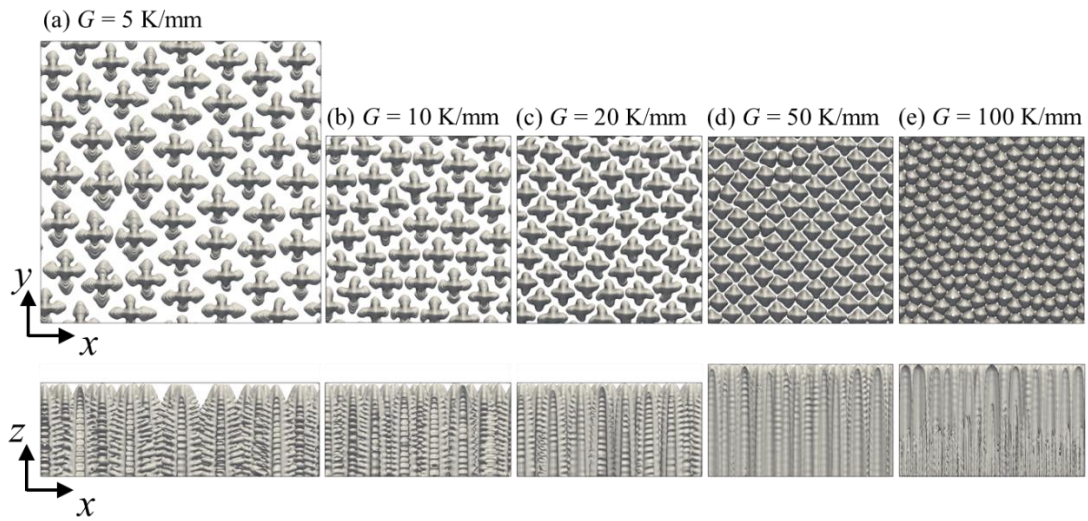


Fig.3.27 Top and side views of the mushy zone extracted from the simulation results in section 2.3. Note that the domain size is different: (a) $1.151 \times 1.151 \times 0.383 \text{ mm}^3$ ($1536 \times 1536 \times 512$ grid points), (b) (c) $0.767 \times 0.767 \times 0.383 \text{ mm}^3$ ($1024 \times 1024 \times 512$ grid points), and (d) (e) $0.767 \times 0.767 \times 0.458 \text{ mm}^3$ ($1024 \times 1024 \times 612$ grid points).

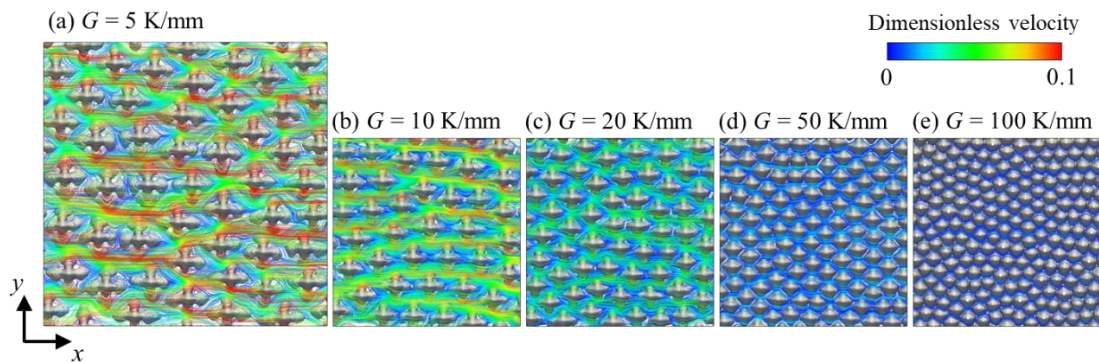


Fig.3.28 Top view of the steady-state flow pattern, indicated by the streamlines and the magnitude of flow velocity (color), computed by the lattice Boltzmann simulation for the solidification morphologies shown in Fig. 3.27.

量の一つであり、本研究では $A_{SL} = \int (1 - \phi^2) dV / (2\sqrt{2} W_0)$ と算出する．ここで、図 3.29(b) に示す A_{SL} の値は、 $G = 5 \text{ K/mm}$ の場合のみ、 x 方向、 y 方向の計算領域サイズの違いを補正するために算出した A_{SL} の値に $1,024^2/1,536^2$ を掛けてている．図 3.29 中の黒線および色線はそれぞれ一方向凝固計算の時刻 $2 \times 10^{6\text{th}}$ step (53.57 s) と $1 \times 10^{7\text{th}}$ step (267.86 s) における組織形態に対する結果をそれぞれ示している．表 3.6 に時刻 $2 \times 10^{6\text{th}}$ step (53.57 s) と $1 \times 10^{7\text{th}}$ step (267.86 s) における一次枝の数およびボロノイ分割した際の各多面体の数を示している．表 3.6 より、時刻 $2 \times 10^{6\text{th}}$ step (53.57 s) と $1 \times 10^{7\text{th}}$ step (267.86 s) において、各多面体の数は異なるが一次枝の数はほぼ同じであることが確認できる．また、時刻 $1 \times 10^{7\text{th}}$ step において六角形が最も多く、それ以外の多面体についてはそのほとんどがほぼ同数の五角形と七角形である．これは、一定数の一次枝が成長し続ける条件において一次枝の配列が徐々に六角形配列を取ることを意味している．図 3.29 より、時刻 $2 \times 10^{6\text{th}}$ step (53.57 s) と $1 \times 10^{7\text{th}}$ step (267.86 s) の異なる一次枝配列の条件の下、ほぼ同じ f_s, A_{SL}, K_x の分布が得られることが確認できる．図 3.29(a) より、 f_s は一次枝先端位置付近において線形に変化している．また、図 3.29(b) と図 3.29(c) に示すように、この範囲において A_{SL} と K_x も線形かつ急激に変化する様子が見られた．このとき、一次枝幹の垂直断面積はデンドライト形態よりもセル形態の方が一次枝先端位置から離れるにつれて急激に増加する．また、 G が大きいほど一次枝の数が増える．そのため、 G が大きくなるほど一次枝先端近傍における f_s, A_{SL}, K_x の絶対値の勾配が増加した．一次枝先端近傍以降の範囲において、 f_s, A_{SL}, K_x の絶対値の勾配の値は全ての G の値において減少した． $G = 10, 20 \text{ K/mm}$ のデンドライト構造において、 f_s と A_{SL} に二次枝に起因した振動が見られる．一方で、この振動幅は単一デンドライトを評価した場合と比べてかなり小

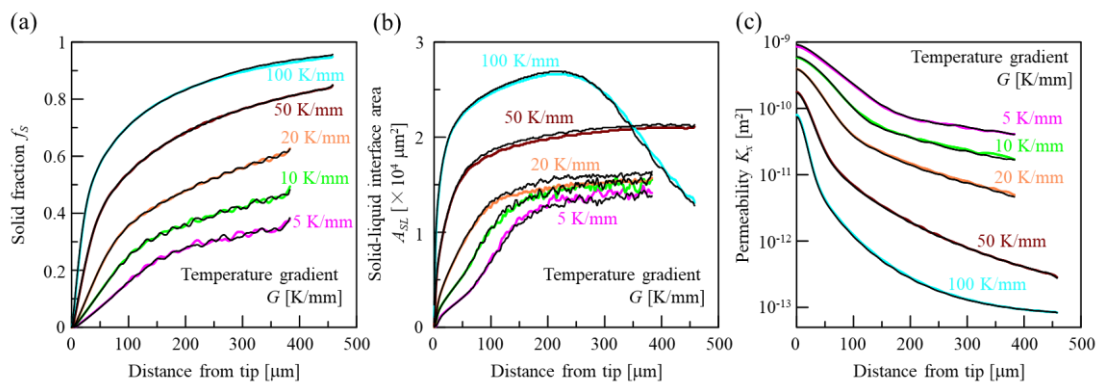


Fig.3.29 Variations of (a) solid fraction f_s , (b) solid-liquid interface area A_{SL} , and (c) permeability K_x from top to bottom in the z -direction of the simulation domain. The black and colored curves indicate the results at $2 \times 10^{6\text{th}}$ (53.57 s) and $1 \times 10^{7\text{th}}$ (267.86 s) steps, respectively, in the directional solidification simulations. Note that, only for $G = 5 \text{ K/mm}$, the values in (b) are reduced by a factor of $1,024^2/1,536^2$ due to the different computational domain size.

さい。これは、大規模計算によって複数のデンドライトから構成される凝固組織を取り扱うことで、振動が平均化されたためである。図 3.29(b)に示すように、 $G = 100 \text{ K/mm}$ の場合のみ、一次枝先端位置からおよそ $250 \text{ }\mu\text{m}$ 離れた位置よりセルが粗大化し隣接粒と結合することで A_{SL} が減少する様子が見られた。図 3.29(c)に示すように、 G が大きいほど透過率が減少している。この傾向は、図 3.28 に示すように G が大きいほど一次枝の数が増加し液相の流速が減少することからも見て取れる。図 3.29(c)に示すように、大規模計算によって多数の一次枝からなる凝固組織を取り扱ったことで、全ての G につ

Table 3.6 Number of primary arms and Voronoi cells at $2 \times 10^{6\text{th}}$ and $1 \times 10^{7\text{th}}$ steps in the directional solidification simulations. Summation of the number of quadrilaterals, pentagons, hexagons, heptagons, and octagons should be equal to the number of all Voronoi cells. The primary arm spacing λ computed by Voronoi tessellation is also indicated.

$G \text{ [K/mm]}$	Step	Primary arm	Voronoi cell	Quadrilateral	Pentagon	Hexagon	Heptagon	Octagon	$\lambda \text{ [}\mu\text{m]}$
5	$2 \times 10^{6\text{th}}$	50	50	0	11	28	11	0	180.4
	$1 \times 10^{7\text{th}}$	51	51	0	12	27	12	0	176.8
10	$2 \times 10^{6\text{th}}$	37	37	1	7	21	7	1	138.3
	$1 \times 10^{7\text{th}}$	37	37	0	6	25	6	0	137.9
20	$2 \times 10^{6\text{th}}$	61	61	0	15	32	13	1	107.2
	$1 \times 10^{7\text{th}}$	60	60	0	11	38	11	0	107.8
50	$2 \times 10^{6\text{th}}$	120	120	0	32	59	26	3	76.9
	$1 \times 10^{7\text{th}}$	120	120	0	19	82	19	0	76.3
100	$2 \times 10^{6\text{th}}$	200	200	0	44	114	40	2	59.3
	$1 \times 10^{7\text{th}}$	200	200	0	26	148	26	0	58.9

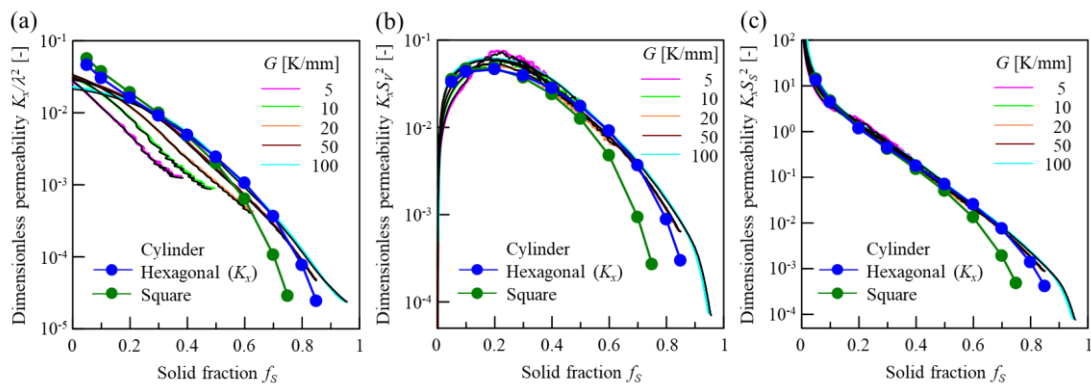


Fig.3.30 Variations of dimensionless permeability (a) K_x/λ^2 , (b) $K_x S_V^2$, and (c) $K_x S_S^2$ as a function of solid fraction f_s . The black and colored curves indicate the results at $2 \times 10^{6\text{th}}$ (53.57 s) and $1 \times 10^{7\text{th}}$ (267.86 s) steps, respectively, in the directional solidification simulations.

いて滑らかな透過率の変化が見られる．図 3.28 と図 3.29(c)には x 方向流れの結果のみを示しているが， y 方向流れについても流体計算を実施した．このとき， x 方向と y 方向でほぼ同じ透過率が得られたため，以降は x 方向流れに対する結果のみを示す．

図 3.30 に無次元透過率を固相率 f_s の関数として示す．ここで，透過率の無次元化には一次枝間隔 λ ，界面積密度 S_v ，比界面積 S_s をそれぞれ用いる．図 3.30(a)において，一次枝間隔 λ には表 3.6 に示すボロノイ分割より求めた値を用いる． S_v と S_s は凝固組織形態を特徴付ける積分量であり [116]，それぞれ $S_v = A_{SL}/V$ および $S_s = A_{SL}/V_s = S_v/f_s$ と定義される．図中の色は図 3.29 において用いた色と同じ色を用いた．また，比較のために図 3.30 中に正六角形配列と四角形配列の円柱周りの無次元透過率も示している．図 3.30(a)より， $G = 100 \text{ K/mm}$ における無次元透過率の変化は正六角形配列の円柱の無次元透過率と良く似た変化挙動を示した．これは， $G = 100 \text{ K/mm}$ の組織形態がセルで構成された六角形配列が支配的な構造を取っているためである．一方で， f_s の小さい範囲において両結果に乖離が見られた．これは，円柱構造と異なりセル形態の場合には一次枝先端近傍において放物線形状を取るためである．さらに， f_s の大きい領域においてもセル同士が結合し六角形配列が不完全になることで円柱の結果からの乖離が生じている．図 3.30(a)では， G の値が小さいほど K_λ/λ^2 が減少し，それぞれ円柱の結果から下側にずれるように推移している．図 3.30(b)において，全ての G の値に関する $K_\lambda S_v^2$ の曲線は正六角形配列の円柱の結果とほぼ同様の変化の傾向を示した．しかしながら，両結果には一部差異が見られる．一方，図 3.30(c)に示す全ての G の値に関する $K_\lambda S_s^2$ の曲線は正六角形の円柱の結果と良好に一致することが確認できた． $S_s^2 = (S_v^2/f_s^2)$ のため， $K_\lambda S_s^2$ と $K_\lambda S_v^2$ の違いは f_s が小さい場合において顕著になる．図 3.30(b)において $f_s < 0.5$ の範囲で複数デンドライト/セルと正六角形配列の円柱との結果の間に差が見られるが，図 3.30(b)において見られるこの差は図 3.30(c)においては比較的小さくなっている．これにより，正六角形配列の円柱周りの垂直方向流れにおける $K_\lambda S_s^2$ を用いて，柱状凝固組織の垂直方向流れ時の $K_\lambda S_s^2$ を表現できることが分かった．

3.7 結言

本章では，3次元バルク材料内におけるデンドライト成長に対して対流が与える影響を系統的に評価可能な，液相流動下における二元合金凝固のための3次元大規模フェーズフィールド格子ボルツマン計算手法の開発を行った．また，開発手法を用いることで， $1,024^3$ 格子を用いた 3×10^5 time steps までの大規模フェーズフィールド格子ボルツマン計算を，256 GPU を用いて約 8 時間で計算完了することを確認した．これはデンドライト成長に対流が及ぼす影響の系統的な評価を行うにあたって実用的な計算時間である．その後，強制対流下において成長する3次元等軸デンドライトが対流方向から傾いた方向に優先成長方向を持つ場合の成長挙動を詳細に評価した．そこで，上流方向に成長するデンドライト一次枝の成長速度は対流がない場合と比べて加速し，下流方向の一次枝

の成長速度は減速することを確認した。この時、上流方向の一次枝成長速度の加速した割合は下流方向の減速した割合よりも大きかった。さらに、デンドライト一次枝の優先成長方向と上流方向とのなす角度が 0° から 180° の範囲で大きくなるほど、一次枝先端の成長速度が単調に減速するを明らかにした。また、デンドライト一次枝の実際の成長方向と優先成長方向との角度差も、優先成長方向と上流方向とのなす角度の変化に伴って特徴的な変化を示すことを確認した。この変化は、デンドライト一次枝の成長方向に応じた一次枝近傍の流れ場の変化やそれに伴う一次枝先端形状の変化によって引き起こされる。

次に、 $1,536 \times 1,536 \times 3,072$ の数値格子を用いた世界最大規模の強制対流下における複数等軸デンドライト成長計算を実施し、開発手法を用いることで対流下における複数デンドライトの相互作用を表現可能であることを示した。自然対流が二元合金の一方凝固において形成される3次元デンドライト凝固組織に与える影響の評価を行った。この評価において、同一の合金系、一定の温度勾配と引抜速度の下、重力の値を系統的に変えた二元合金の一方凝固計算を行った。その結果、3次元計算では、下降流が生じる場合、下向きの重力が強くなるほど平均一次枝間隔が広くなることが分かった。さらに、下降流が二次枝の成長を促進する様子が確認できた。上昇流は、デンドライトが安定に成長する条件ではデンドライト形態にほとんど影響を及ぼさなかった。また、上向き重力が一定値以上の場合において、柱状上昇流を伴う不安定なデンドライト成長が観察され、フレッケル凝固欠陥の生成が確認された。重力によって引き起こされる自然対流の影響は、2次元計算よりも3次元計算の方が小さくなることが分かった。これは、3次元計算の方が2次元計算よりも自然対流の流速が小さくなるためである。3次元計算において、下降流が生じることで一次枝配列の安定化が早まることが分かった。この時、下降流は一次枝間隔を均一にするようには作用しなかった。

最後に、フェーズフィールド法と格子ボルツマン法の大規模計算による固液共存領域内の流体の透過率評価手法を構築した。また、構築手法を用いて、複数のデンドライト/セルから構成される柱状凝固組織の透過率評価を行った。この時、複数のデンドライト/セルから構成される柱状凝固組織の組織形態や透過率に関する特徴量について、大規模計算結果より成長方向に沿った滑らかな分布を得ることができた。評価の結果、複数のデンドライト/セルから構成される柱状凝固組織に対して垂直な流れの透過率は、一次枝の本数が一定の場合、一次枝の配列に依存しないことが分かった。また、複数のデンドライト/セルから構成された柱状凝固組織の比界面積を用いた無次元透過率は、正六角形配列の円柱回りの流れの透過率とよく一致することが分かった。この結果により、正六角形配列の円柱に関する比界面積を用いた無次元透過率によって、柱状凝固組織に対して垂直方向の流れの無次元透過率を高精度に予測可能であることが分かった。これは、比界面積が既知の場合、透過率も既知になることを意味する。本研究より得られた新たな知見は、複数の GPU を用いた大規模計算によって初めて明らかになった。

4. 液相流動と熱・溶質の移流拡散を伴う凝固計算の高速化

重力下における合金凝固において、自然対流は温度や溶質濃度の不均一分布によって必然的に発生する。近年の X 線を用いた二元合金一方向凝固のその場観察において、自然対流のデンドライト成長過程に与える影響が直接観察されている[35]。一方で、このような凝固過程において生じる現象の詳細を明らかにするためには、実験観察だけでなく、固液相変態、温度、溶質濃度、液相流動の時間発展を同時に考慮した数値計算による相補的な評価が重要である。しかしながら、数値計算において、非等温凝固における熱拡散方程式を解く場合、熱と溶質の拡散速度の違いから一般的に溶質拡散を表現するために必要な時間解像度の 100～1,000 倍の時間解像度を必要とする。そのため、フェーズフィールド法を用いた自然対流を伴うデンドライト成長計算に関する先行研究は、等温条件[194]や連続冷却[103]、frozen temperature approximation [102]などの熱拡散方程式を解く必要のない仮定を設けて実施されている。本研究では、固液相変態、熱・溶質の移流拡散、液相流動を全て考慮したマルチフィジックス凝固現象を大規模に計算可能な手法を構築する。計算には、非等温二元合金凝固のための定量的フェーズフィールドモデル[67]と液相流動を表現するための格子ボルツマンモデルを連成したモデルを用い、場ごとに異なる格子幅および時間増分を用いる複数時間増分法と複数格子法[127]を適用することで特に計算コストの高い熱拡散と液相流動の計算を効率化する。また、複数 GPU 並列計算により計算の大規模化および高速化を図る。構築した手法を用いて、計算性能評価および熱溶質対流を伴う複数デンドライト成長計算を実施し、構築手法の有用性を示す。

4.1 数値モデル

本章では、熱と溶質の移流拡散と液相流動を伴うデンドライト成長に着目する。ここで、デンドライト成長は希薄二元合金の非等温凝固のための定量的フェーズフィールドモデル[67]を用いて表現する。フェーズフィールド変数 ϕ は固相において $\phi = +1$ 、液相において $\phi = -1$ と定義する。 ϕ の時間発展方程式は次式で表される。

$$\tau \xi(u) \frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla [W^2 \nabla \phi] + \sum_{r=x,y,z} \frac{\partial}{\partial r} \left[W \frac{\partial W}{\partial (\partial \phi / \partial r)} |\nabla \phi|^2 \right] - f' - \lambda g'(\theta + Mu) \quad (4.1)$$

ここで、 τ はフェーズフィールド緩和時間、 W は界面幅であり、それぞれ $\tau = \tau_0 a_s^2$ および $W = W_0 a_s$ で表される。 $\xi(u)$ は $\xi(u) = Le^{-1} + [1 + (1-k)u]M$ で表される。ここで、 Le はレイリス数であり、熱拡散係数 D_T と液相の溶質拡散係数 D_l を用いて $Le = D_T/D_l$ と与えられる。また、 M は熱毛管長 d_0 と化学的毛管長 d_s の比であり $M = d_0/d_s$ と与えられる。 $a_s(\nabla \phi)$ は立方晶の界面異方性関数であり式(4.2)で与えられる。

$$a_s(\nabla\phi) = (1-3\varepsilon_4) \left[1 + \frac{4\varepsilon_4}{1-3\varepsilon_4} \frac{(\partial\phi/\partial x)^4 + (\partial\phi/\partial y)^4 + (\partial\phi/\partial z)^4}{|\nabla\phi|^4} \right] \quad (4.2)$$

ここで、 ε_4 は異方性強度である． f' と g' はそれぞれ $f' = -\phi + \phi^3$ および $g' = (1-\phi^2)^2$ と与える． λ は駆動力の係数である．

無次元温度 θ は $\theta = (T-T_0)/(L/c_p)$ と定義する．ここで、 T は温度、 T_0 は基準温度、 L は単位体積当たりの潜熱、 c_p は単位体積当たりの比熱をそれぞれ示している． θ の時間発展方程式は式(4.3)で表される．

$$\frac{\partial\theta}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla\theta = D_T \nabla^2\theta + \frac{1}{2} \frac{\partial\phi}{\partial t} \quad (4.3)$$

ここで、 $\mathbf{U}$ は液相の流速ベクトルを示している．式(4.3)右辺第2項は固液相変態に伴い放出される潜熱による温度変化を表現している．

無次元溶質濃度 u は $u = (C_l - C_l^e)/(C_l^e - C_s^e)$ と定義する．ここで、 C_l と C_s はそれぞれ液相と固相の溶質濃度であり、 C_l^e と C_s^e は温度 T_0 における液相と固相の平衡溶質濃度を示している．このとき、溶質の希薄な溶液を仮定すると、 $k = C_s^e/C_l^e = C_s/C_l$ の関係が成立する．なお、 k は分配係数である．固液界面における溶質濃度 C は $C = [(1-\phi)C_l + (1+\phi)C_s]/2$ と表現される． u の時間発展方程式は式(4.4)で表現される．

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} [1+k-(1-k)\phi] \left(\frac{\partial u}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla u \right) &= \nabla \cdot (D_l q(\phi) \nabla u - \mathbf{J}_{AT}) \\ &+ \frac{1}{2} [1+(1-k)u] \frac{\partial\phi}{\partial t} - \nabla \cdot \mathbf{J} \end{aligned} \quad (4.4)$$

ここで、 D_s は固相の溶質拡散係数、 $\nabla \cdot \mathbf{J}$ はデンドライトの高次枝を生成するためのノイズ項である[161]．また、 $q(\phi) = [kD_s + D_l + (kD_s - D_l)\phi]/(2D_l)$ は固液界面における溶質拡散係数の補間関数である．さらに、 $\mathbf{J}_{AT}$ は antitrapping 流束項[67]であり、次式で与えられる．

$$\mathbf{J}_{AT} = -\frac{1}{2\sqrt{2}} \left(1 - \frac{kD_s}{D_l} \right) W_0 [1+(1-k)u] \frac{\partial\phi}{\partial t} \frac{\nabla\phi}{|\nabla\phi|} \quad (4.5)$$

格子ボルツマン方程式は次式で表現される．

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_{LBM}} \left[f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{eq}(\mathbf{x}, t) \right] + 3w_i \rho \mathbf{c}_i \cdot \mathbf{F} \Delta t + w_i \rho \left[\frac{3(\mathbf{c}_i - \mathbf{U})}{c^2} + \frac{9(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U}) \mathbf{c}_i}{c^4} \right] \cdot \mathbf{G} \Delta t \quad (4.6)$$

ここで、 $f_i(\mathbf{x}, t)$ は位置 $\mathbf{x}$ 、時刻 t において i 番目の離散速度方向に速度 $\mathbf{c}_i$ で移動する粒子分布関数である．また、 τ_{LBM} は格子ボルツマン緩和時間を示している．液相の密度 ρ と流速 $\mathbf{U}$ はそれぞれ次式より算出される．

$$\rho = \sum_{i=0}^{Q-1} f_i \quad (4.7)$$

$$\mathbf{U} = \frac{1}{\rho} \sum_{i=0}^{Q-1} \mathbf{c}_i f_i \quad (4.8)$$

ここで、 Q は離散速度方向の数を示している．平衡分布関数 f_i^{eq} は次式で与えられる．

$$f_i^{eq}(\mathbf{x}, t) = w_i \rho \left[1 + \frac{3\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U}}{c^2} + \frac{9(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U})^2}{2c^4} - \frac{3\mathbf{U} \cdot \mathbf{U}}{2c^2} \right] \quad (4.9)$$

ここで、 w_i は重み関数、 $c = \Delta x / \Delta t$ は格子速度である．また、 Δx と Δt は格子幅および時間増分である．さらに、 $\mathbf{F}$ はブシネスク近似を適用した浮力であり、次式で表される．

$$\mathbf{F}(\mathbf{x}, t) = -\rho_0 \mathbf{g} \left[\beta_c (C - C_0) + \beta_T (T - T_0) \right] \cdot \frac{(1 - \phi)}{2} \quad (4.10)$$

ここで、 $\mathbf{g}$ は重力ベクトル、 ρ_0 は初期溶質濃度 C_0 、温度 T_0 の時の液相の密度である．また、 β_c と β_T はそれぞれ溶質および熱の膨張係数を示している． $\mathbf{G}$ は固液界面における散逸抗力[83]であり、式(4.11)で表される．

$$\mathbf{G}(\mathbf{x}, t) = -\frac{2\rho v h}{W_0^2} \left(\frac{1 + \phi}{2} \right)^2 \mathbf{U} \quad (4.11)$$

ここで, ν は動粘性係数, $h = 2.757$ は無次元定数[83]である.

式(4.1), (4.3), (4.4)の時間発展方程式は有限差分法を用いて計算する. 時間微分の計算には 1 次精度風上差分を用いる. また, 式(4.1)の拡散項のラプラシアンは第 1 および第 2 近接格子点 19 点を用いた等方性の離散化[120]を用いて計算し, 式(4.3)と式(4.4)の拡散項のラプラシアンは 2 次精度中心差分法を用いて計算する. 式(4.3)と式(4.4)の移流項は 5 次精度の weighted essentially non-oscillatory (WENO) [180-181]を用いて計算する. 式(4.6)の格子ボルツマン方程式の計算には第 3 章の図 3.1 に示した 3 次元 19 速度モデルを用いる.

4.2 計算手法

4.2.1 複数格子および時間増分法

式(4.1), 式(4.3), 式(4.4)を有限差分法によって陽的かつ安定に計算するための時間増分の条件は, 拡散方程式に関するフォン・ノイマンの安定性解析よりそれぞれ $\Delta t \leq \tau_0 \zeta(u_0) \Delta x^2 / (6W_0^2)$, $\Delta t \leq \Delta x^2 / (6D_T)$, $\Delta t \leq \Delta x^2 / (6D_l)$ となる. また, 格子ボルツマン方程式の時間増分は $\Delta t = (\tau_{LBM} - 0.5) \Delta x^2 / (3\nu)$ と与えられる. 表 4.1 に本章の計算に用いるモデル材料 SCN-3.0wt%acetone の物性値を示す. ここで, 流体計算を安定かつ高速に実施するため, τ_{LBM} の値を 1 とし動粘性係数 ν のみ実験で測定された値[195]の約 1/50 の値を用いる. 表 4.1 に示す材料物性を用いた場合の時間増分 Δt と格子幅 Δx の関係を, 3 種の異なる格子幅についてそれぞれ表 4.2 に示す. このとき, 各場の時間増分は大きい値から順に Δt_1 (Eq. (4.1)) $>$ Δt_2 (Eq. (4.4)) $>$ Δt_3 (Eq. (4.6)) $>$ Δt_4 (Eq. (4.3)) と並べられる. 表 4.2 より, 本計算に用いる物性値の場合, 時間増分はそれぞれ $\Delta t_2 / \Delta t_1 \approx 10^{-2}$, $\Delta t_3 / \Delta t_1 \approx 10^{-3}$, $\Delta t_4 / \Delta t_1 \approx 10^{-4}$ となることが分かった. そのため, 本章の数値モデルを用いたデンドライト成長計算では, 各場に異なる時間増分を用いることで計算を効率化することが出来る. 本研究で開発したコードは各場にそれぞれ異なる格子幅を用いて計算することが可能である. 一方で, 各場の格子幅の設定には, 界面幅の範囲に各格子最低 1 点の格子点が含まれる必要があること, 格子ボルツマン計算における動粘性係数 ν が Δt と Δx の組合せによって $\nu = (2\tau_{LBM} - 1) \Delta x^2 / (6\Delta t)$ と決定されることの 2 点が制約になる. また, 第 3 章に示した液相流動を伴う等温二元合金凝固のための 3 次元フェーズフィールド格子ボルツマン計算において, 格子ボルツマン方程式を解く場合の計算時間は解かない場合の約 4 倍になることが確認された. これは, 格子ボルツマン方程式を解くための計算コストがフェーズフィールドおよび溶質の時間発展方程式を解くための計算コストよりも 3 倍程度大きいことを示している. さらに, 熱拡散係数 D_T は溶質拡散係数 D_l よりも約 100 倍大きい. ため, 熱拡散方程式を解くためには溶質拡散方程式を解く場合よりも極めて小さい時間増分を用いる必要がある. それらの点を考慮して, 本章の計算では, 図 4.1 に示すように式(4.1), (4.3), (4.4), (4.6)を解く際に 3 種類の格子幅 Δx_p , Δx_f , Δx_θ と 2 種類の時間増分 Δt_p , Δt_θ を用いる. ここで, 格子幅に関しては, Δx_p は式(4.1)と式(4.4), Δx_f は式(4.6), Δx_θ

は式(4.3)を解く際にそれぞれ用いる. また, 時間増分に関しては, Δt_p は式(4.1), (4.4), (4.6), Δt_θ は式(4.3)を解く際に用いる. 簡単化のため, Δt_p は Δt_θ の整数倍とする. また, $\Delta x_p, \Delta x_f, \Delta x_\theta$ はそれぞれ $L_i = N_{pi}\Delta x_p = N_{\theta i}\Delta x_\theta = N_{fi}\Delta x_f$ の関係式を制約として設定される. ここで, L_i は i 方向($i = x, y, z$)の計算領域幅であり, 整数 $N_{pi}, N_{\theta i}, N_{fi}$ はそれぞれフェーズフィールド

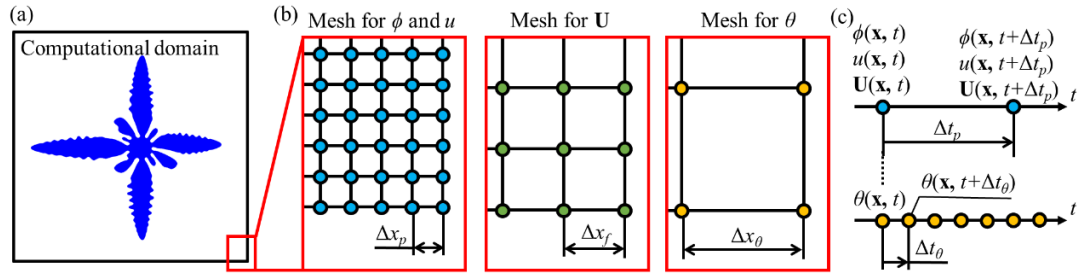


Fig.4.1 Schematic representations of the multiple mesh and time step method. In this study, (b) three different meshes and (c) two different time increments are set.

Table 4.1 Material parameters of SCN-3.0 wt.% acetone

Property	Symbol	Value	Reference
Melting point of SCN (K)	T_m	331.233	[196]
Gibbs–Thomson coefficient (K· μm)	Γ	6.62×10^{-2}	[19]
Strength of anisotropy	ε_4	0.02	
Thermal diffusivity ($\mu\text{m}^2/\text{s}$)	D_T	1.134×10^5	[19]
Solute diffusivity in the liquid ($\mu\text{m}^2/\text{s}$)	D_l	1.27×10^3	[197]
Solute diffusivity in the solid ($\mu\text{m}^2/\text{s}$)	D_s	1.27×10^{-1}	
Unit supercooling (K)	L/c_p	23.13	[19]
Liquidus slope (K/mol frac.)	m	-216	[197]
Partition coefficient	k	0.103	[197]
Dynamic viscosity (cm^2/s)	ν	1.21×10^{-4}	
Thermal expansion factor (1/K)	β_T	7.91×10^{-4}	[198]
Solute expansion factor (1/wt.%)	β_c	2.32×10^{-3}	[198]

Table 4.2 Relations between mesh size Δx and time increment Δt for the material parameters shown in Table 4.1.

	$\Delta x = 0.25 \mu\text{m}$	$\Delta x = 0.50 \mu\text{m}$	$\Delta x = 1.00 \mu\text{m}$
$\Delta t_1 = \tau_0 \zeta(u_0) \Delta x^2 / (6W_0^2)$ in Eq. (4.1)	$2.340 \times 10^{-4} \text{ s}$	$1.872 \times 10^{-3} \text{ s}$	$1.497 \times 10^{-2} \text{ s}$
$\Delta t_2 = \Delta x^2 / (6D_l)$ in Eq. (4.4)	$8.202 \times 10^{-6} \text{ s}$	$3.280 \times 10^{-5} \text{ s}$	$1.312 \times 10^{-4} \text{ s}$
$\Delta t_3 = (2\tau_{LBM} - 1) \Delta x^2 / (6\nu)$ in Eq. (4.6)	$8.587 \times 10^{-7} \text{ s}$	$3.435 \times 10^{-6} \text{ s}$	$1.374 \times 10^{-5} \text{ s}$
$\Delta t_4 = \Delta x^2 / (6D_T)$ in Eq. (4.3)	$9.185 \times 10^{-8} \text{ s}$	$3.674 \times 10^{-7} \text{ s}$	$1.469 \times 10^{-6} \text{ s}$

変数, 温度場, 流れ場の計算のための i 方向格子点数を示している. このとき, $N_{pi}, N_{\theta i}, N_{\bar{p}i}$ はそれぞれ後述する複数 GPU 並列計算における i 方向の領域分割数の整数倍である必要がある. 異なる格子間における物理データの補間には 1 次精度補間を用いる.

4.2.2 複数 GPU 並列計算

複数の GPU を用いた並列計算によって大規模な 3 次元計算を実現する. 3 次元計算領域は 2 次元方向に分割し, 分割した領域それぞれに GPU を 1 基割り当てて計算を行う. 各計算ステップの開始時には, 分割領域境界のデータを隣接する領域同士で交換することにより分割領域袖のデータを補完する. このとき, 各場に異なる格子幅を用いているため, 場毎にデータの転送量が異なる. 本章の計算は, 東京工業大学の GPU スーパーコンピュータ TSUBAME3.0 を用いて実施する. TSUBAME3.0 は NVIDIA 社の GPU, Tesla P100 を 2160 基搭載した GPU メインのスーパーコンピュータである. 計算コードは, C/C++ 言語をベースとして, GPU 計算部分を Compute Unified Device Architecture (CUDA) を用いて記述した. また, 分割領域境界データの交換のためのノード間通信には OpenMPI を用いた.

4.3 計算性能評価

熱・溶質対流を伴うデンドライト成長を十分な精度で計算可能な格子幅 Δx_θ および Δx_f の評価を行う. ここで, その他の計算パラメータとして $\Delta x_p = 0.25 \mu\text{m}$, $W_0 = \Delta x_p/0.6 = 0.417 \mu\text{m}$, $\tau_0 = 0.0110 \text{ s}$, $\tau_{LBM} = 1$ を用いる. Δt_p は, 流体計算を解く場合には $\Delta t_p = (\tau_{LBM} - 0.5)\Delta x_f^2/(3\nu)$, 解かない場合には $\Delta t_p = \Delta x_p^2/(7D_l)$ より算出する. また, Δt_θ は $\Delta t_\theta = \Delta t_p/n$ と設定する. ここで, n は関係式 $\Delta t_\theta \leq \Delta x_\theta^2/(7D_T)$ を満足する最小の整数である. まず, 単一 GPU 計算による対流がない場合の単一デンドライト成長計算によって格子幅 Δx_θ の評価を行う. 初めに $C_0 = 3.0 \text{ wt\%}$, $T_0 = 321.02 \text{ K}$ の過冷却溶液で満たされた $256^3 \Delta x_p^3 (= 64^3 \mu\text{m}^3)$ の計算領域を設定し, 半径 $R = 6\Delta x_p$ の固相核を 1 個原点位置 $\mathbf{x} = (0, 0, 0)^T$ に配置する. また, 境界条件として, 全ての場, 全ての境界に零ノイマン条件を適用する. Δx_θ の評価のため, $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 1, 2, 4$ の異なる 3 種類の格子幅を用いて, 時刻 $t = 0.63 \text{ s}$ まで計算を行った. それらの計算において, $-0.8 < \phi_{eq} < 0.8$ の範囲のフェーズフィールド界面幅は, フェーズフィールドの平衡分布 $\phi_{eq} = -\tanh(r/(\sqrt{2} W_0))$ より約 $5.2\Delta x_p$ と算出される. そのため, Δx_θ は平衡界面幅を超えないように設定した. 計算の結果を図 4.2 に示す. 図 4.2(a) に時刻 $t = 0.63 \text{ s}$ における $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 4$ の場合のデンドライト形態を $\phi = 0$ の等高面として示す. さらに, x - z 平面上の温度場の分布と x - y 平面上の溶質濃度場の分布をそれぞれ図中に示す. また, $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 1$ の場合と $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 4$ の場合の y - z 平面上の固液界面形態を図 4.2(b) にそれぞれ黒および赤の実線で示す. 図より, 2 つの固液界面形態が良好に一致している様子が確認できる. $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 1, 2, 4$ を用いた場合の計算の実行時間を図 4.2(c) に示している. ここで, Δt_θ は $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 1, 2, 4$ の場合において, それぞれ Δt_θ

$= \Delta t_p/89, \Delta t_p/22, \Delta t_p/5$ とした. 図 4.2(c)に示すように, $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 4$ を用いた場合の計算において, $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 1$ の場合の約 10.4 倍の高速化が得られた. 以上の結果に基づき, 以降の計算では, Δx_θ は $\Delta x_\theta = 4\Delta x_p = 1.00 \mu\text{m}$ と設定する.

次に, 単一 GPU 計算により強制対流下における単一デンドライト成長計算を行い, 格子幅 Δx_f を評価した. 始めに $C_0 = 3.0 \text{ wt\%}$, $T_0 = 321.02 \text{ K}$ の過冷却溶液で満たされた $256\Delta x_p \times 256\Delta x_p \times 512\Delta x_p = 64 \times 64 \times 128 \mu\text{m}^3$ の計算領域を設定し, 半径 $R = 6\Delta x_p$ の固相核を 1 個, 位置 $\mathbf{x} = (0, 256\Delta x_p, 0)^T$ に配置する. 境界条件として, 左側の境界に流入境界条件($\phi = -1, \theta = \theta_0, u = u_0, \mathbf{U} = (0, 200\mu\text{m/s}, 0)^T$)を, 右側の境界に流出境界条件($\partial\phi/\partial y = 0, \partial\theta/\partial y = 0, \partial u/\partial y = 0, \partial\mathbf{U}/\partial y = (0, 0, 0)^T$)をそれぞれ適用する. その他の境界には, $\mathbf{U}$ については滑り境界条件を, ϕ, θ, u については零ノイマン境界条件をそれぞれ適用する. 評価計算は $\Delta x_f/\Delta x_p = 1, 1.5, 2, 2.5$ を用いて時刻 0.34 s まで行った. ここで, $\Delta x_f/\Delta x_p = 2.5$ を用いた場合, 固液界面において抗力が発散し計算に失敗した. 図 4.3(a)に時刻 $t = 0.34 \text{ s}$ における $\Delta x_f/\Delta x_p = 2$ の場合のデンドライト形態, x - z 平面上の温度場の分布, x - y 平面上の

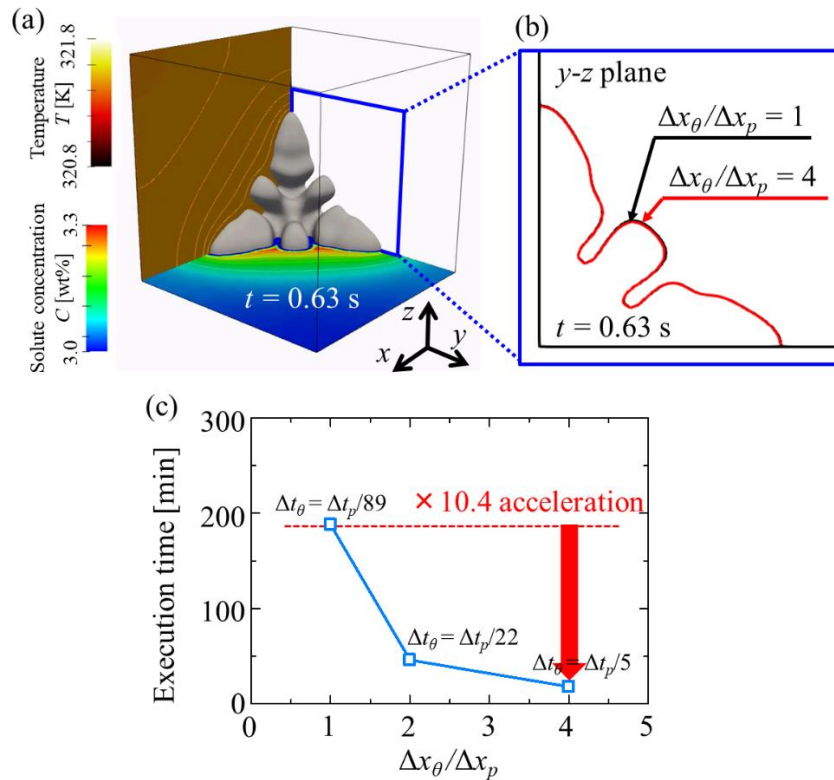


Fig.4.2 Evaluation of Δx_θ through the single dendrite growth simulation without convection. (a) The dendrite morphology, the distribution of temperature on the x - z plane, and the distribution of solute concentration on the x - y plane where $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 4$ at $t = 0.63 \text{ s}$. (b) Solid-liquid interfaces ($\phi = 0$) at $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 1$ and $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 4$. (c) The relationship between the mesh size and execution time of the simulations where $\Delta x_\theta/\Delta x_p = 1, 2$, and 4 .

溶質濃度場の分布をそれぞれ示す．さらに，液相の流速を白矢印で図中に示している．また，図 4.3(b)に同時刻における $\Delta x_f/\Delta x_p = 1$ の場合と $\Delta x_f/\Delta x_p = 2$ の場合の y - z 平面上の固液界面形態をそれぞれ黒および赤の実線で示している．この時，図より両方の線が良好に一致していることが確認できる． $\Delta x_f/\Delta x_p = 1, 1.5, 2$ を用いた場合の計算実行時間を図 4.3(c)に示す． $\Delta x_f/\Delta x_p = 1, 1.5, 2$ を用いた計算では， Δt_p をそれぞれ $\Delta t_p = \Delta t_\theta, 2\Delta t_\theta, 3\Delta t_\theta$ とした．このとき， $\Delta x_f/\Delta x_p = 2$ の計算において， $\Delta x_f/\Delta x_p = 1$ の計算と比べて約 11.6 倍の計算高速化を達成した．以上の結果より，以降の計算では， Δx_f を $\Delta x_f = 2\Delta x_p = 0.50 \mu\text{m}$ と設定する． $\Delta x_f = \Delta x_p$ と $\Delta x_\theta = 4\Delta x_p$ を用いた計算では， $\Delta x_\theta = \Delta x_p$ を用いた場合に適用される時間増分よりも 16 倍大きな時間増分を用いることが出来る．そのため，複数時間増分法と複数格子法を適用することによって，全ての場と同じ時間増分と格子幅を用いた場合の計算よりも約 100 倍計算を高速化できることが分かった．

複数時間増分法および複数格子法を適用した 3 次元非等温二元合金凝固フェーズフ

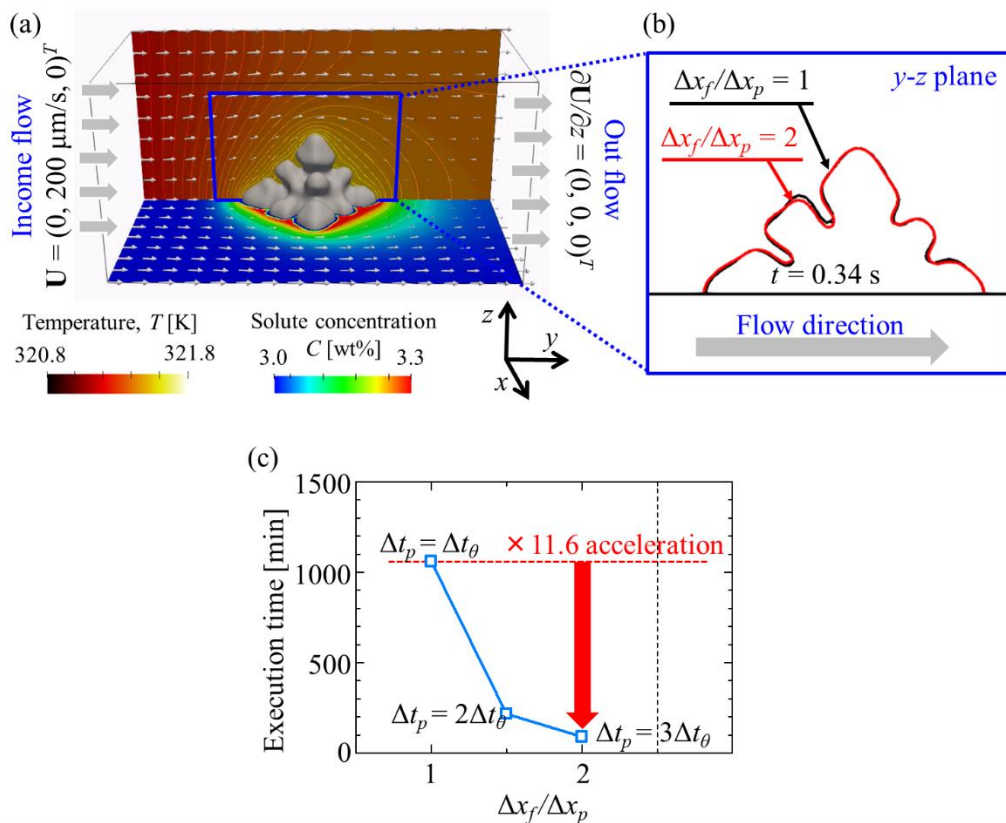


Fig.4.3 Evaluation of Δx_f through the single dendrite growth simulations with convection. (a) The dendrite morphology, the distribution of temperature on the x - z plane, and the distribution of solute concentration on the x - y plane where $\Delta x_f/\Delta x_p = 2$ at $t = 0.34 \text{ s}$. (b) Solid-liquid interfaces ($\phi = 0$) at $\Delta x_f/\Delta x_p = 1$ and $\Delta x_f/\Delta x_p = 2$. (c) The relationship between the mesh size and the execution time of the simulations where $\Delta x_f/\Delta x_p = 1, 1.5, \text{ and } 2$.

ィールド格子ボルツマンモデルの複数 GPU 並列計算手法の並列性能を評価するために、強スケーリング評価と弱スケーリング評価を行う。それらの評価は、格子幅について $\Delta x_\theta = 4\Delta x_p$ と $\Delta x_f = 2\Delta x_p$ を用いて実施する。この時、計算性能を評価する指標として、データの入出力時間を除く $200\Delta t_\theta$ 当りの計算実行時間を用いる。強スケーリング評価において、全計算領域を $(512\Delta x_p)^3$ および $(1,024\Delta x_p)^3$ と固定し、4~256 GPU の範囲で GPU 数を変えて計算性能を評価した。図 4.4(a)に強スケーリング評価の結果を示す。図中において、横軸は計算に用いた GPU 数を、縦軸は計算実行時間をそれぞれ示す。ここで、計算領域が $(512\Delta x_p)^3$ の場合には 4~32 GPU の範囲において計算実行時間が線形に減少し、 $(1,024\Delta x_p)^3$ の場合には 32~256 GPU の範囲で線形に減少した。これらの計算実行時間の線形な減少が見られた範囲において、GPU 数を増やすことで線形に計算を高速化できることを確認した。次に、弱スケーリング評価のため、GPU 数の増加により計算領域を拡張した場合の計算性能を測定した。この時、各 GPU の受け持つ計算格子点数は $(256\Delta x_p)^3$ および $(384\Delta x_p)^3$ とした。図 4.4(b)に弱スケーリング評価の結果を示す。図より、4~256 GPU の範囲において計算実行時間がほぼ一定であり、今回評価した範囲において GPU 数を増やすことで計算領域を効率的に拡張可能であることが確認できた。強スケーリング評価および弱スケーリング評価の両結果より、開発した並列 GPU 計算コードによって、複数時間増分法および複数格子法を適用した 3 次元デンドライト成長計算の高速化および大規模化を達成できることを確認した。

最後に、熱溶質対流を伴う 3 次元一方向凝固計算を行い、開発手法の可用性を示す。計算領域を $256\Delta x_p \times 1,536\Delta x_p \times 2,048\Delta x_p = 64 \times 384 \times 512 \mu\text{m}^3$ と設定し、 $C_0 = 3.0 \text{ wt\%}$ の過冷却溶液で満たす。z 軸に沿った温度勾配を与えるために領域内の初期温度を $T|_{t=0} = T_0 + Gz$ と設定し、上下の境界にそれぞれ境界条件 $T|_{z=2048\Delta x_p} = T_0 + G(2048\Delta x_p - V_p t)$ および $T|_{z=0} = T_0 - GV_p t$ を適用した。なお、温度勾配 G および引抜速度 V_p はそれぞれ $G = 10 \text{ K/mm}$, $V_p = 30 \mu\text{m/s}$ と設定した。その他の z 方向境界条件として、 ϕ と u には零ノイ

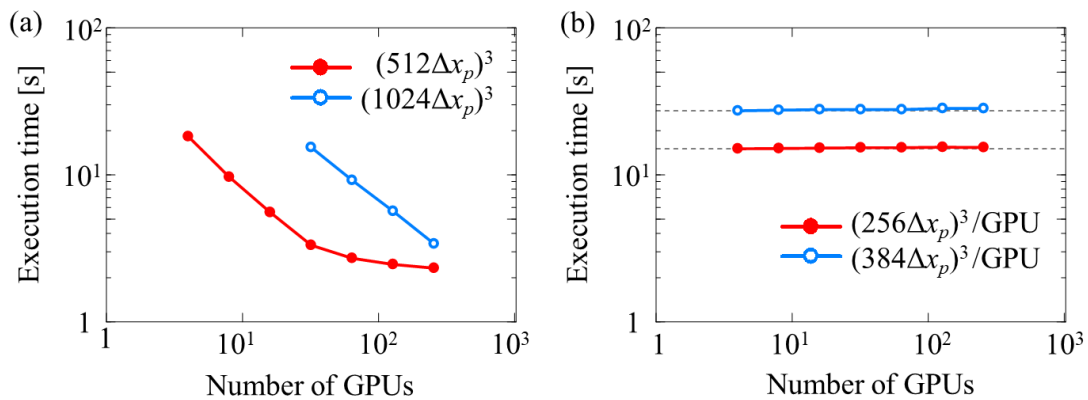


Fig.4.4 Parallel performance of the phase-field lattice Boltzmann simulation. The results of (a) strong and (b) weak scaling tests with $\Delta x_\theta = 4\Delta x_p$ and $\Delta x_f = 2\Delta x_p$.

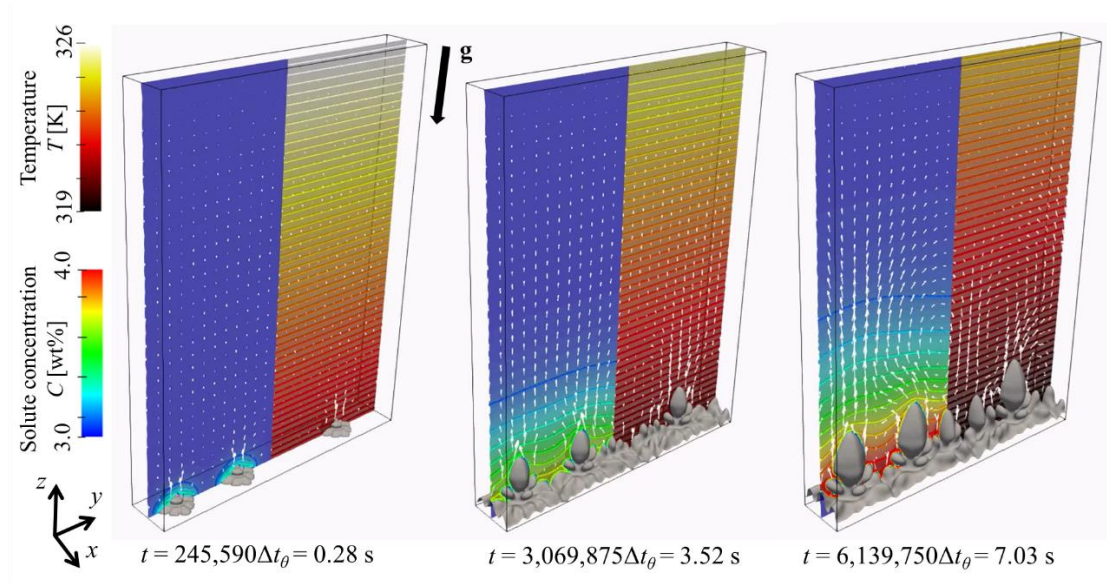


Fig.4.5 Time slices of the dendrite morphologies, the distributions of solute concentration and temperature, and flow velocity on the y - z plane through the center of the domain in the 3D simulation of directional solidification with thermosolutal convection.

マン境界条件を、 $\mathbf{U}$ には滑りなし条件をそれぞれ適用した。また、 y 方向境界条件として全ての場に周期境界条件を、 x 方向境界条件として ϕ , θ , u には零ノイマン境界条件、 $\mathbf{U}$ には滑りなし条件をそれぞれ適用した。熱溶質対流を促進するため、 $\mathbf{g}$ は $\mathbf{g} = (0, 0, -g_0/10)^T$ と設定した。なお、 $g_0 = 9.81 \text{ m/s}^2$ である。計算開始時に、半径 $R = 6\Delta x_p$ の半球状の固相核を3個、それぞれ位置 $\mathbf{x} = (128\Delta x_p, 161\Delta x_p, 0)^T$, $(128\Delta x_p, 539\Delta x_p, 0)^T$, $(128\Delta x_p, 1,229\Delta x_p, 0)^T$ に配置する。計算は時刻 $t = 6,139,750\Delta t_\theta = 7.03 \text{ s}$ まで行う。図4.5にデンドライト形態および計算領域中央を通る y - z 平面上の溶質濃度場と温度場の分布をそれぞれ示す。図4.5より、液相から固相に排出された溶媒よりも比重の軽い溶質が浮力によって上昇流を発生させる様子が確認できた。この計算では、64 GPUを用いて計算を行い、計算の完了に約86時間を要した。本計算は凝固の初期段階で終了しているものの、フェーズフィールド計算のための格子点数が8億格子点を超える大規模な計算に成功しており、今後、様々な凝固条件においてバルク内部の3次元デンドライト成長に対する熱[125]や液相流動[199]の影響を評価する際に本研究において開発した計算手法が強力なツールに成り得ることを示すことが出来た。

4.4 結言

複数 GPU 並列計算と複数時間増分法および複数格子法を組み合わせることで、熱・溶質対流を伴うデンドライト成長のための3次元フェーズフィールド格子ボルツマン計算の高速化を達成した。複数時間増分法と複数格子法の適用によって、全ての場に同

じ格子幅と時間増分を用いた場合の計算よりも約 100 倍の高速化を達成した。さらに、複数時間増分法と複数格子法を実装した複数 GPU 並列計算によって、計算に用いる GPU 数を増やすことで良好な計算高速化および計算規模の拡張を達成できることを確認した。最後に、開発手法が 3 次元バルク材料内部において熱や液相流動がデンドライト形態に与える影響を評価する上で有用な計算ツールになることを示した。

5. 液相中を運動するデンドライトの凝固計算

凝固中の等軸晶形成過程において生じる等軸デンドライトの運動はマクロ偏析や凝固組織形態に強く影響する[5]. 本章では, 固体の運動が凝固組織の形成過程に与える影響を評価可能とするために, 液相中を運動しながら成長するデンドライトの大規模計算法を構築する. まず, 単一デンドライトの長距離落下中の成長挙動評価を可能とするため, 計算領域移動法を適用した GPU 計算コードを開発する. その後, 開発手法を用いて2次元問題における単一等軸デンドライトの長距離沈降計算を実施し, 落下によるデンドライト成長挙動の変化を評価する. さらに, 多数の等軸デンドライトの運動を伴う等軸晶形成過程を大規模に再現可能な計算手法を開発する. この時, 多数のデンドライトを表現するのに必要な複数フェーズフィールド変数の取り扱いを active parameter tracking 法[200-201]を用いて効率化する. また, 複数 GPU 並列計算を適用することで計算の大規模化と高速化を図る. 最後に, 開発手法を用いて, 多数のデンドライトが計算領域上端から降り注ぎながら堆積して等軸晶を形成するシャワーリング計算を行い, 得られた等軸晶形態から実装した計算モデルにおけるデンドライト同士の衝突・結合モデルの妥当性を検証する.

5.1 単一デンドライト成長の数値モデル

重力下における等温過冷却溶液中の2次元二元合金デンドライト凝固を計算対象とする. このとき, 計算モデルとして Rojas らのフェーズフィールド格子ボルツマンモデル[109, 202]を用いる. 計算に GPU を用いた並列計算を適用することで計算の高速化を図る. さらに, デンドライト成長計算と流体計算に異なる格子幅の格子を用いる複数格子法を用いて計算の効率化を行う.

フェーズフィールド格子ボルツマンモデルにおいて, デンドライト成長は希薄二元合金凝固のための定量的フェーズフィールドモデル[66]を用いて表現する. 固液界面の時間発展は次式のフェーズフィールド方程式を解くことで表現する.

$$\tau \left(\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{U}_s \cdot \nabla \phi \right) = \nabla \left[W^2 \nabla \phi \right] + \sum_{r=x,y} \frac{\partial}{\partial r} \left[W \frac{\partial W}{\partial (\partial \phi / \partial r)} |\nabla \phi|^2 \right] - f' - \lambda^* g' u \quad (5.1)$$

ここで, ϕ はフェーズフィールド変数であり, $\phi = +1$ のとき固相, $\phi = -1$ のとき液相を示す. τ はフェーズフィールド緩和時間, W は界面幅であり, それぞれ $\tau = \tau_0 a_s^2$ および $W = W_0 a_s$ で表される. $a_s(\nabla \phi)$ は立方晶の界面異方性を表現するための異方性関数であり次式で表される.

$$a_s(\nabla\phi) = (1-3\epsilon_4) \left[1 + \frac{4\epsilon_4}{1-3\epsilon_4} \frac{(\partial\phi/\partial\tilde{x})^4 + (\partial\phi/\partial\tilde{y})^4}{|\tilde{\nabla}\phi|^4} \right] \quad (5.2)$$

ここで、 ϵ_4 は異方性強度を表している．式(5.2)中の $\tilde{\nabla}\phi$ はデンドライト結晶の[100]と[010]方向に対応する座標($\tilde{x}, \tilde{y}$)における ϕ の空間勾配であり、 x - y 平面上で反時計回りに θ 回転する回転行列 $\mathbf{R}(\theta)$ を用いて $\tilde{\nabla}\phi = \mathbf{R}(-\theta)\nabla\phi$ と表す． λ^* は熱力学的駆動力の係数である．式(5.1)中の $\mathbf{U}_s$ は各位置における固相の運動速度であり、式(5.1)の左辺第2項の ϕ の移流項によってデンドライトの運動を表現する．

無次元溶質濃度 u は $u = (C_l - C_l^e)/(C_l^e - C_s^e)$ と定義する．ここで、 C_l と C_s はそれぞれ液相および固相の溶質濃度であり、 C_l^e と C_s^e はそれぞれ液相および固相の平衡溶質濃度である．溶質濃度 C は混合則より、 $C = [(1+\phi)C_l + (1-\phi)C_s]/2$ と定義する． u の時間発展方程式は次式で表される．

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} [1+k-(1-k)\phi] \left(\frac{\partial u}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla u \right) &= \nabla (D_l q(\phi) \nabla u - \mathbf{J}_{AT}) \\ &+ \frac{1}{2} [1+(1-k)u] \frac{\partial \phi}{\partial t} - \nabla \cdot \mathbf{J} \end{aligned} \quad (5.3)$$

ここで、 k は分配係数であり、希薄溶体近似により $k = C_s/C_l = C_s^e/C_l^e$ で与えられる[63]． D_l と D_s は液相及び固相の溶質拡散係数である．また、 $q(\phi) = [kD_s + D_l + (kD_s - D_l)\phi]/(2D_l)$ は補間関数である． $\mathbf{J}_{AT}$ は anti-trapping 流束項[66]であり、次式で表される．

$$\mathbf{J}_{AT} = -\frac{1}{2\sqrt{2}} \left(1 - \frac{kD_s}{D_l} \right) W_0 [1+(1-k)u] \frac{\partial \phi}{\partial t} \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \quad (5.4)$$

式(5.3)中の $\nabla \cdot \mathbf{J}$ はデンドライトの高次枝を発生させるためのノイズ項[161]である．

液相流動は次式の格子ボルツマン方程式を用いて表現する[179]．

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_{LBM}} [f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{eq}(\mathbf{x}, t)] + G_i(\mathbf{x}, t) \Delta t \quad (5.5)$$

ここで、 $\mathbf{x}$ と t はそれぞれ位置と時刻を示しており、 f_i は i 番目の離散速度方向の粒子分布関数、 τ_{LBM} は格子ボルツマン緩和時間である．液相の密度 ρ および流速 $\mathbf{U}$ はそれぞれ次式で表される．

$$\rho = \sum_{i=0}^{Q-1} f_i \quad (5.6)$$

$$\rho \mathbf{U} = \sum_{i=0}^{Q-1} \mathbf{c}_i f_i \quad (5.7)$$

ここで、 Q は離散速度の数である。本研究では2次元9速度(D2Q9)モデルを用いる。 f_i^{eq} は平衡分布関数であり次式で表される[183]。

$$f_i^{eq}(\mathbf{x}, t) = w_i \rho \left[1 + \frac{3\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U}}{c^2} + \frac{9(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U})^2}{2c^4} - \frac{3\mathbf{U} \cdot \mathbf{U}}{2c^2} \right] \quad (5.8)$$

ここで、 $c = \Delta x / \Delta t$ は格子速度である。なお、 Δx と Δt は格子幅および時間増分である。 $\mathbf{c}_i$ と w_i はそれぞれ離散粒子速度と重み関数である。 G_i は固液界面近傍における抗力を表現する2次精度離散外力項であり、次式で表される。

$$G_i(\mathbf{x}, t) = w_i \rho \left[\frac{3(\mathbf{c}_i - \mathbf{U})}{c^2} + \frac{9(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{U})\mathbf{c}_i}{c^4} \right] \cdot \mathbf{G} \quad (5.9)$$

ここで、 $\mathbf{G}$ は固液界面近傍の散逸抗力分布[83]であり、次式で表される。

$$\mathbf{G}(\mathbf{x}, t) = \frac{2\rho\nu h}{W_0^2} \left(\frac{1+\phi}{2} \right)^2 (\mathbf{U}_s - \mathbf{U}) \quad (5.10)$$

ここで、 $h = 2.757$ は無次元定数[83]、 $\nu = (\tau_{LBM} - 0.5)\Delta x^2 / (3\Delta t)$ は動粘性係数である。

デンドライトの運動は次の運動方程式を解くことで表現する。

$$M \frac{d\mathbf{U}_T}{dt} = \mathbf{F} \quad (5.11)$$

$$\mathbf{I} \frac{d\boldsymbol{\omega}}{dt} = \mathbf{T} \quad (5.12)$$

ここで、 M は固相の質量、 $\mathbf{I}$ は慣性モーメントテンソルである。また、 $\mathbf{U}_T$ は固相の並進速度、 $\boldsymbol{\omega}$ は固相の回転速度である。 $\mathbf{F}$ は固相に作用する力であり、固液界面における抗力と固液密度比に起因した浮力の総和として求められる。

$$\mathbf{F} = -\sum_{\mathbf{x} \in \Omega} \mathbf{G}(\mathbf{x}, t) \Delta V + \left(1 - \frac{\rho_L}{\rho_s}\right) M \mathbf{g} \quad (5.13)$$

ここで、 Ω は固液界面領域を示しており、 $\mathbf{g}$ は重力ベクトル、 $\Delta V = \Delta x^3$ は1格子分の体積である。 $\mathbf{T}$ は固相に作用するトルクであり、次式で表される。

$$\mathbf{T} = -\sum_{\mathbf{x} \in \Omega} \{(\mathbf{x} - \mathbf{X}) \times \mathbf{G}(\mathbf{x}, t) \Delta V\} \quad (5.14)$$

ここで、 $\mathbf{X}$ は固相の重心位置を示している。固相の各位置における運動速度 $\mathbf{U}_s$ は次式で表される。

$$\mathbf{U}_s(\mathbf{x}, t) = \mathbf{U}_T + \boldsymbol{\omega} \times (\mathbf{x} - \mathbf{X}) \quad (5.15)$$

上記の時間発展方程式(式(5.1), 式(5.3), 式(5.11), 式(5.12))の2次元計算には有限差分法を用いる。時間微分の離散化には一次精度風上差分を用いる。式(5.1)および式(5.3)中の拡散項のラプラシアン計算には、それぞれ第1, 第2近接格子点9点を用いた等方性差分法[120]および2次精度中心差分法を用いる。式(5.1)および式(5.3)中の移流項の空間微分の離散化には、5次精度の **weighted essentially non-oscillatory (WENO)** [180-181]を用いる。

5.2 単一デンドライト成長の計算手法

5.2.1 複数格子法

デンドライト成長のフェーズフィールド計算では、デンドライト先端の大きな曲率を精度良く表現するために細かい計算格子が必要になる。このとき、デンドライト成長計算において液相流動を考慮すると、計算コストはさらに大きくなる。第3章で実施した3次元フェーズフィールド格子ボルツマン計算において、その計算コストは液相流動を解かない場合の計算と比べて約4倍大きくなる。計算コストを減らすために、本研究では複数格子法を用いる。ここでは、格子ボルツマン計算に用いる計算格子をフェーズフィールド計算に用いる格子よりも粗くする。図5.1(a)に複数格子法の概略を示す。図中において、式(5.5)の格子ボルツマン方程式を計算するための格子幅 Δx_f は、式(5.1)のフェーズフィールド方程式および式(5.3)の溶質濃度の時間発展方程式を計算するための格子幅 Δx_p の1.5倍とした。異なる計算格子間におけるデータの補間には1次精度線形

補間を用いる。

5.2.2 計算領域移動法

デンドライトの長距離沈降を表現するために、計算領域移動法を実装した。概略を図5.1(b)に示す。この手法において、計算領域は過冷却溶液中を沈降する等軸デンドライトに追従して移動する。これは、デンドライトの重心位置が計算領域の中心にほぼ固定されることを意味している。なお、重力の向きは y 方向とする。後述の計算において、デンドライトは重力方向である y 方向とほぼ平行に沈降するため、計算領域は y 方向にのみ移動させる。デンドライトの重心位置が計算領域の中央から距離 ΔL を超えて y 方向へ移動した時、以下の処理を行う。なお、計算領域を動かした後の $\phi, u, \mathbf{U}, f_i$ の分布はそれぞれ $\phi^*, u^*, \mathbf{U}^*, f_i^*$ で示す。計算領域上部 $y \leq L - \Delta L$ において、計算領域の移動は $\phi^*(x, y) = \phi(x, y + \Delta L)$, $u^*(x, y) = u(x, y + \Delta L)$, $\mathbf{U}^*(x, y) = \mathbf{U}(x, y + \Delta L)$, $f_i^*(x, y) = f_i(x, y + \Delta L)$ のように代入することで表現する。ここで、 (x, y) 座標の原点は左上端とし、 y 軸の正方向を下向きに設定する。計算領域下部 $y > L - \Delta L$ において、液相の流入を $\phi^*(x, y) = -1$, $u^*(x, y) = u_0$, $\mathbf{U}^*(x, y) = (0, 0)^T$ と表す。ここで、 u_0 は初期過飽和度であり、 $f_i^*(x, y)$ は $\mathbf{U}^*(x, y) = (0, 0)^T$ を用いて式(5.8)より算出される。本研究では、 ΔL は $\Delta L = n_p \Delta x_p = n_f \Delta x_f$ と設定した。ここで、 n_p と n_f は関係式 $n_p \Delta x_p = n_f \Delta x_f$ を満足する最小の自然数である。

5.3 円柱落下計算による妥当性評価

まず、開発した計算手法の妥当性を評価するため、無限長のチャンネル内を垂直に沈降する単一円形粒子の計算を行う。次に、等温過冷却溶液中において沈降するデンドライトの成長計算を実施する。それらの計算のために、表5.1に示す SCN-3.0wt% acetone の物性値を用いる。単一緩和時間の格子ボルツマン計算では、 τ_{LBM} の値が1から離れる

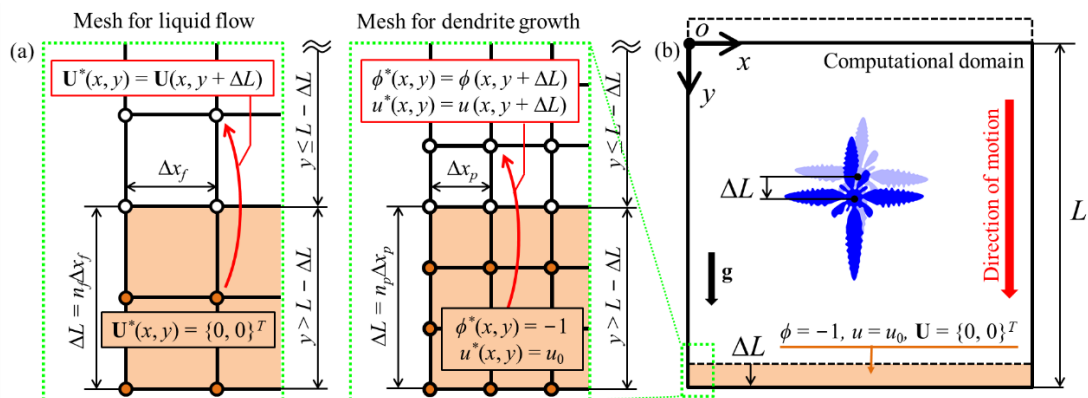


Fig.5.1 Schematics of (a) multi-level meshes and (b) operation of the moving-frame algorithm when the dendrite moves more than ΔL along y -direction from the center of the computational domain.

と計算精度が顕著に悪化することが報告されている[203]. そのため, 本研究では, 格子ボルツマン計算を安定かつ効率的に計算を行うために, $\tau_{\text{LBM}} = 1$ とし動粘性係数 ν に実験による測定値[195]の 1/10 の値を用いる. その他の計算パラメータは, $|\mathbf{g}| = 9.81 \text{ m/s}^2$, $\tau_0 = 4.365 \times 10^{-3} \text{ s}$, $W_0 = \Delta x_p / 0.6 = 0.4167 \text{ }\mu\text{m}$, $\Delta x_p = 0.25 \text{ }\mu\text{m}$, $\Delta t = 3.866 \times 10^{-7} \text{ s}$ と設定した. 計算は NVIDIA 社の GPU, Tesla P100 を用いて実施する. GPU 計算コードは Compute Unified Device Architecture (CUDA)を用いて記述した.

無限長のチャンネル内を垂直に沈降する単一円形粒子の計算を行い, 粒子の沈降速度が一定値 U_c に収束したときの抗力係数 C_D およびレイノルズ数 Re を評価する. 計算条件は文献[208]と同じである. 計算条件を図 5.2 に示す. 計算領域幅は x 方向と y 方向をそれぞれ $W = 320\Delta x_p$ および $H = 1600\Delta x_p$ とする. 計算の開始時に, 直径 $D = 80\Delta x_p$ の円形粒子を位置 $(x, y) = (W/2, H/4)$ に配置する. 計算中, 計算領域は円形粒子の重心位置を計算領域内の初期位置 $(x, y) = (W/2, H/4)$ に保つように y 方向に移動する. 計算領域の右側と左側には滑りなし条件を適用する. さらに, 計算領域の下端および上端にはそれぞれ流入条件 ($\mathbf{U} = (0, 0)^T$) および流出条件 ($\partial \mathbf{U} / \partial y = (0, 0)^T$) を設定する. ここで, C_D と Re はそれぞれ $C_D = \pi(\rho_s - \rho_l)D|\mathbf{g}|/(2\rho_l U_c^2)$ および $Re = DU_c/\nu$ より与えられる. 抗力係数とレイノルズ数の関係の評価するために, 異なる 4 種類の動粘性係数 $\nu = 6.063 \times 10^{-4}, 3.032 \times 10^{-5}, 6.063 \times 10^{-6}, 3.032 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ を用いてそれぞれ計算を行う. ここで, ν は Δt の値を変えることで変更する. 図 5.3 に C_D と Re の関係を示す. 図中において, 格子幅の比 $\Delta x_f/\Delta x_p = 1.0$ および $\Delta x_f/\Delta x_p = 1.5$ を用いた場合に得られた計算結果をそれぞれ示している. なお, $\Delta x_f/\Delta x_p = 2.0$ を用いた場合, 固液界面において抗力が発散し計算に失敗した. 図 5.3 より, $\Delta x_f/\Delta x_p = 1.0$ および $\Delta x_f/\Delta x_p = 1.5$ を用いた場合の計算結果が互いに良好に一致していることが確認できる. 同じ動粘性係数の値を用いた計算において, $\Delta x_f/\Delta x_p = 1.5$ とした場合の計算の実行時間は $\Delta x_f/\Delta x_p = 1.0$ とした場合の約 4.3 倍高速化した. 比較のために, Wachs らの計算結果[208]を図 5.3 中に黒実線で示す. $1 < Re < 10$ の範囲において, 開発した手法により得られた計算結果は Wachs らの結果[208]と良好に一致した.

Table 5.1 Material properties of SCN-3.0wt. % acetone.

Property	Symbol	Value	Reference
Melting point of SCN (K)	T_m	331.233	[204]
Gibbs–Thomson coefficient (K· μm)	Γ	6.525×10^{-2}	[205]
Strength of anisotropy	ε_4	0.02	
Solute diffusivity in the liquid ($\mu\text{m}^2/\text{s}$)	D_l	1.27×10^3	[206]
Solute diffusivity in the solid ($\mu\text{m}^2/\text{s}$)	D_s	1.27×10^{-1}	[207]
Liquidus slope (K/mol frac.)	m	-216	[206]
Partition coefficient	k	0.103	[206]
Ratio of solid-liquid density	ρ_s/ρ_l	1.033	[198]

これにより, 計算領域移動法を用いたフェーズフィールド格子ボルツマン計算により妥当な結果が得られることを確認できた. さらに, $1.0 \leq \Delta x_f / \Delta x_p \leq 1.5$ の範囲において複数格子法を用いて安定に計算を行えることが確認できた. 次節の計算においては格子幅の

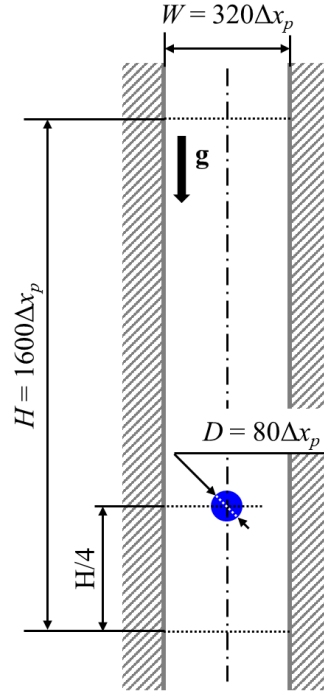


Fig.5.2 Computational conditions for single circular particle settling in fluid.

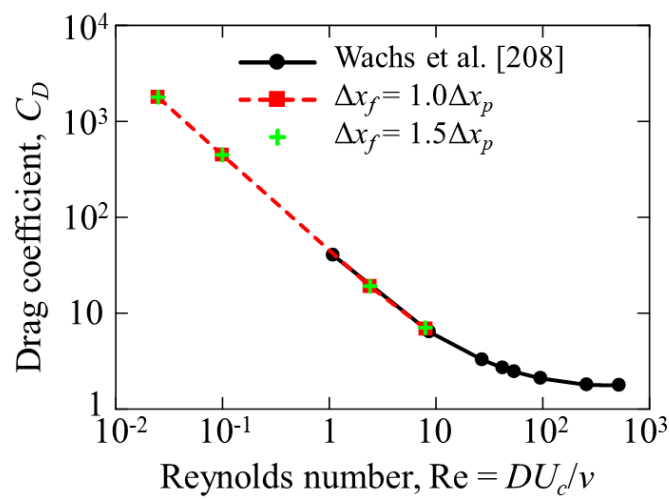


Fig.5.3 Relationship between Reynolds number, Re , and drag coefficient, C_D , in circular particle settling.

比 $\Delta x_f/\Delta x_p = 1.5$ を用いる.

5.4 沈降中の単一デンドライト成長

過冷却溶液中を沈降する等軸デンドライトの成長計算を行う. 計算領域サイズは x 方向と y 方向をそれぞれ $W \times H = 3,072\Delta x_p \times 3,072\Delta x_p$ と設定する. 計算の開始時に, 直径 $D = 20\Delta x_p$ の円形の固相核を, 無次元過飽和度 $u_0 = -0.15$ の等温過冷却溶液で満たされた計算領域の中央に配置する. $\mathbf{U}$ の境界条件として, 計算領域の左右の境界に流出条件 ($\partial \mathbf{U} / \partial x = (0, 0)^T$) を設定し, 下端と上端の境界にそれぞれ流入条件 ($\mathbf{U} = (0, 0)^T$) と流出条件 ($\partial \mathbf{U} / \partial y = (0, 0)^T$) を設定する. さらに, ϕ と u について全ての境界に零ノイマン境界条件を適用する. 4種類の異なる初期結晶方位 $\theta_0 = 0^\circ, 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ$ を用いてそれぞれ計算を行う. これらの計算はデンドライトの成長が境界の影響を受けるまで継続する. 領域サイズ $W \times H = 3,072\Delta x_p \times 3,072\Delta x_p$ において計算可能な沈降時間を決定するため, $\theta_0 = 0^\circ$ の場合の計算について, 領域サイズ $W \times H = 8,192\Delta x_p \times 8,192\Delta x_p$ を用いて同様の計算を行い, デンドライトの沈降速度を比較した. その結果, 時刻 1.88 s までは両計算における沈降速度の誤差が 5% 以下を保つことが確認できた. この結果より, 領域サイズ $W \times H = 3,072\Delta x_p \times 3,072\Delta x_p$ においてデンドライトの沈降を時刻 $t = 1.93$ s まで評価すると決定した. なお, この時刻は 5×10^6 time steps に対応する. これらの計算にかかる実行時間はそれぞれ約 32 時間であった.

図 5.4 に時刻 $t = 0.28, 0.44, 0.58, 0.73, 0.97, 1.16, 1.35, 1.55, 1.74, 1.93$ s における沈降する等軸デンドライトの形態を示す. また, 同図中にデンドライトの重心位置の軌跡を黄実線で示す. 図 5.4 中に示す #1-#4 は 2 次元等軸デンドライトの 4 本の一次枝にそれぞれ割り当てられる. 図 5.4 に示すように, デンドライトの長距離沈降を再現することに成功した. ここで, 時刻 $t = 1.93$ s における沈降距離は時刻 $t = 1.93$ s のデンドライトサイズの約 18 倍であり, 計算領域縦幅 H の約 2.75 倍である. 図 5.5 に $\theta_0 = 0^\circ$ と $\theta_0 = 30^\circ$ の場合の時刻 $t = 0.58, 1.16, 1.55, 1.93$ s における溶質濃度分布を示している. また, 同図中に流速を白矢印で示している. 図 5.5 において, デンドライト成長の間, 固相から溶質に放出された溶質がデンドライトの軌跡に沿って沈降方向後方に尾を引くように液相中に残留する様子が確認できた. 時刻 $t = 1.93$ s におけるデンドライトサイズは領域サイズに比べてかなり小さいが, デンドライト成長がこの時点で既に境界の影響を受けることが事前の評価により分かっている. これはデンドライトの沈降によって引き起こされた液相流動に起因している. 図 5.6 に沈降速度およびデンドライトの重心位置の時間変化を示す. なお, 図中において, 横軸は時刻を, 左の縦軸は沈降速度を, 右の縦軸は重心位置をそれぞれ示す. 図 5.6 に示すように, デンドライトの成長に伴う体積増加によって, 沈降速度は時間経過に伴い線形に加速した. この沈降速度の線形加速は, 沈降しながら成長する単一デンドライトの実験観察結果と同様の傾向を示している[15].

図 5.7 にデンドライトの回転角度の時間変化を示す. また, 各デンドライト一次枝 #1-

#4の先端の成長速度の時間変化を図5.8に示す。 $\theta_0 = 0^\circ$ の場合、ノイズに起因した右側と左側のデンドライト一次枝(#1, #3)の長さの不均衡が生じることで時刻 $t = 1.0$ sからデンドライトの回転が生じている。その後、一次枝#4が傾くことで#4に作用する抗力が急速に増加し、時刻2.0 s付近でデンドライトの回転角度が $\theta = 180^\circ$ になる。 $\theta_0 = 15^\circ$ の場合、計算初期において一次枝#3は一次枝#1よりも早く成長する。その結果、一次枝#3に作用する抗力が増加し、時刻 $t = 1.5$ s付近までデンドライトが時計回りに回転し

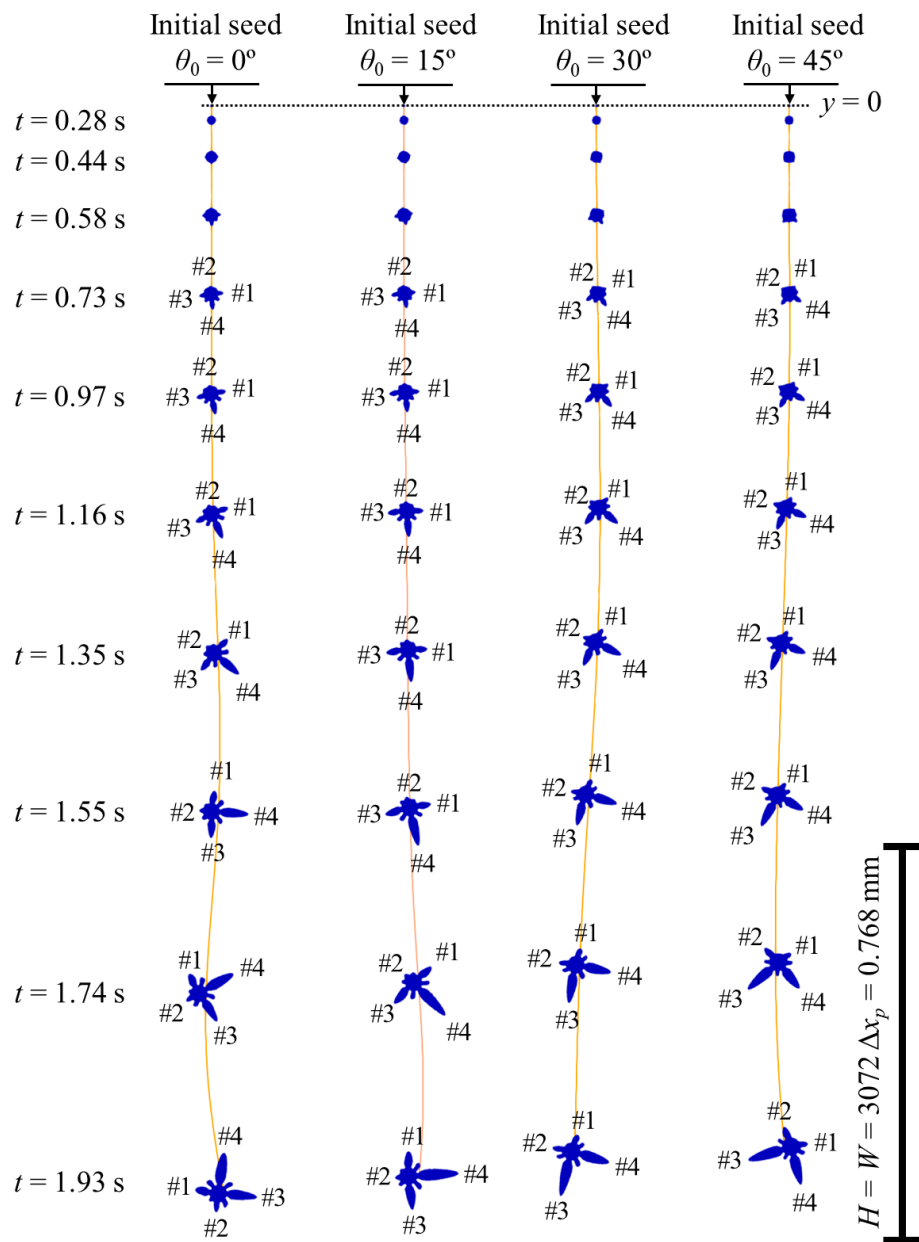


Fig.5.4 Relationship between Reynolds number, Re , and drag coefficient, C_D , in circular particle settling.

た. しかしながら, その後, 一次枝#4に作用する抗力が大きくなることで, 時刻 $t=1.5$ s あたりから反時計回りに回転を始めた. $\theta_0 = 30^\circ$ の場合, 一次枝#4 が一次枝#3 よりも速く成長し, #3 よりも大きな抗力を受けることで, デンドライトは徐々に反時計回り

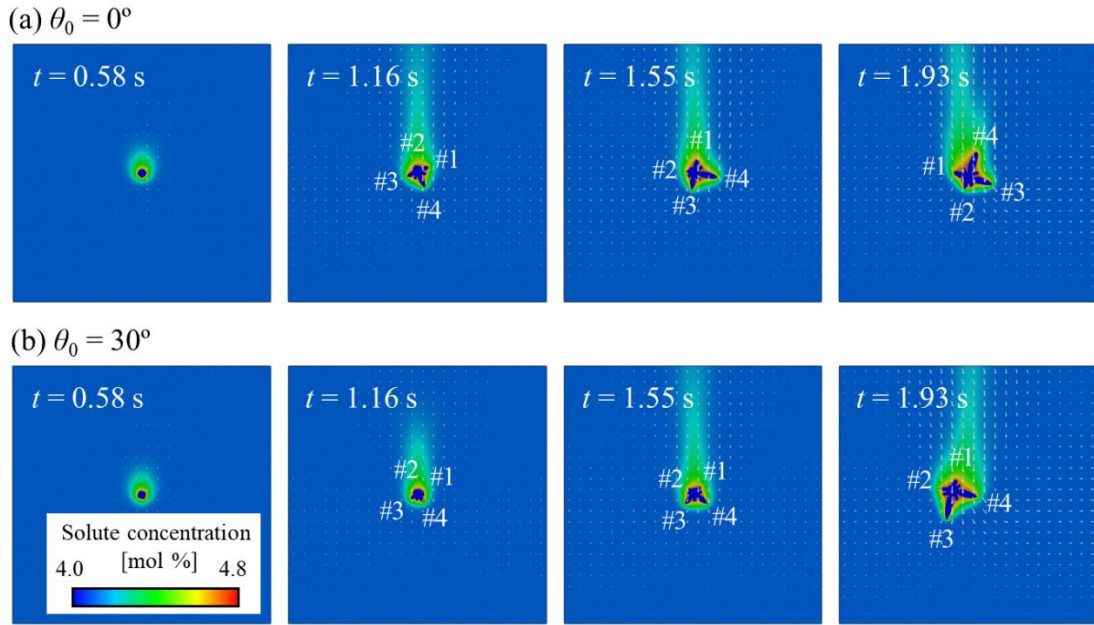


Fig.5.5 Time evolutions of the distributions of solute concentration and flow velocity in the cases of initial orientation $\theta_0 =$ (a) 0° and (b) 30° . The color code indicates solute concentration. White arrows indicate the flow velocity.

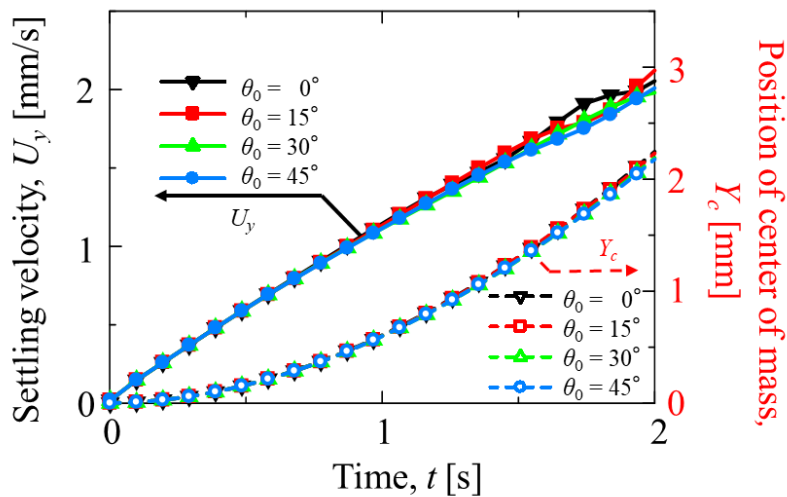


Fig.5.6 Time evolutions of the settling velocity and position of center of mass of dendrite with initial orientations $\theta_0 = 0^\circ, 15^\circ, 30^\circ$, and 45° . Solid and dashed lines show settling velocity and position, respectively.

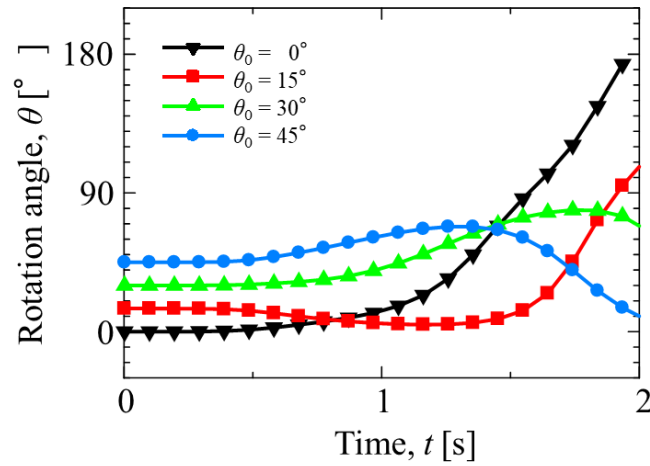


Fig.5.7 Time evolutions of rotation angle of dendrite with initial orientations $\theta_0 = 0^\circ$, 15° , 30° , and 45° .

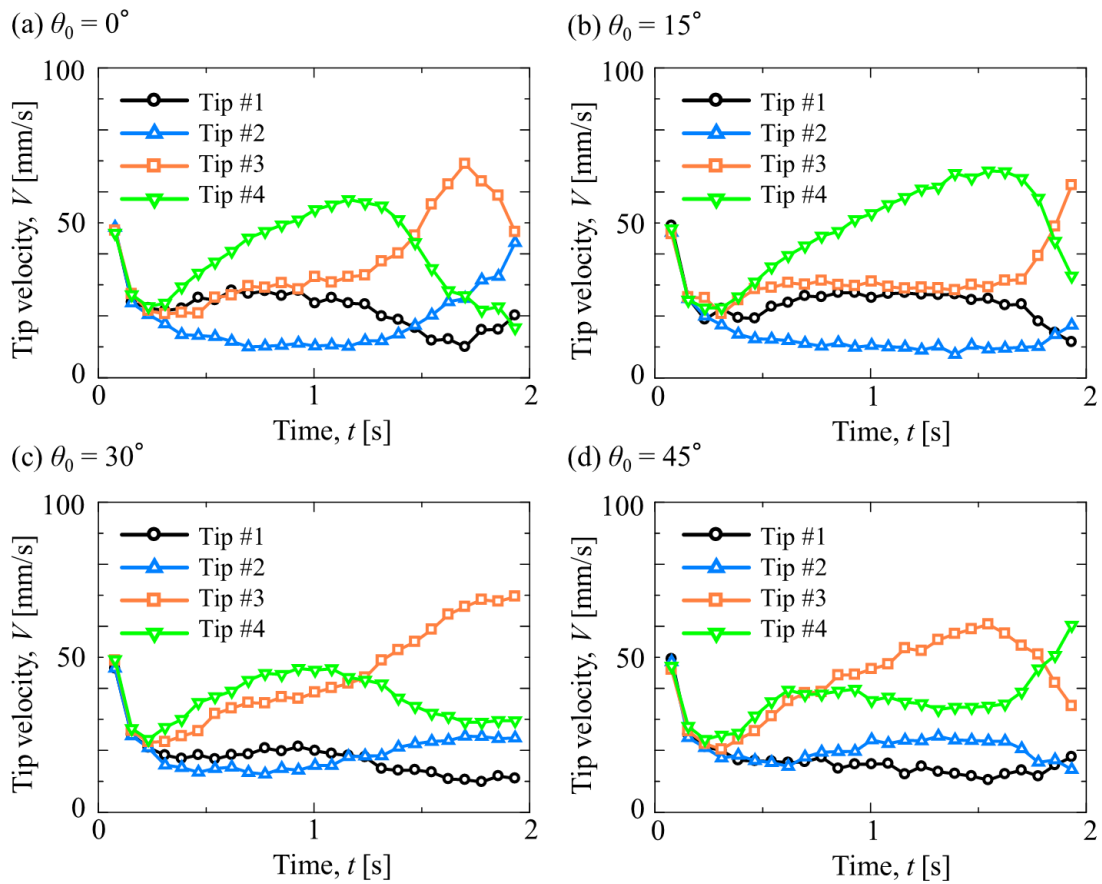


Fig.5.8 Time evolutions of tip velocity of primary arms #1–4 of dendrite with initial orientations $\theta_0 =$ (a) 0° , (b) 15° , (c) 30° , and (d) 45° .

に回転した. $\theta_0 = 45^\circ$ の場合, 時刻 $t = 0 \text{ s}$ から $t = 0.6 \text{ s}$ の間に一次枝#4 が#3 よりも速く成長し, #3 よりも大きな抗力を受けることでデンドライトは僅かに反時計回りに回転した. その後, デンドライトの回転によって一次枝#3 の成長方向が沈降方向に傾くことで一次枝#3 の成長速度が加速した. その結果, 時刻 $t = 1.2 \text{ s}$ 以降, 一次枝#3 の抗力が増加しデンドライトは時計回りに回転した.

以上のように, 本研究において開発した手法は, デンドライトスケールに対して非常に長い距離を沈降しながら成長するデンドライトを表現できることが確認できた. また, これらの計算によって, デンドライトの沈降速度や各一次枝の成長速度, 回転角度を評価することが可能になった.

5.5 複数デンドライト成長の数値モデル

次に, 多数の等軸デンドライトが沈降し等軸晶を形成する過程を再現するために, 複数デンドライトの成長と運動, 衝突, 結合とその後の粒成長を表現可能な数値モデル[111]の複数 GPU 並列実装を行い, 計算の大規模化を図る. 図 5.9 に等軸晶形成過程を表現するために実装した数値モデルにおいて考慮した現象をそれぞれ示す. 本研究において用いたモデルでは, デンドライトの成長はフェーズフィールド法, 液相流動は格子

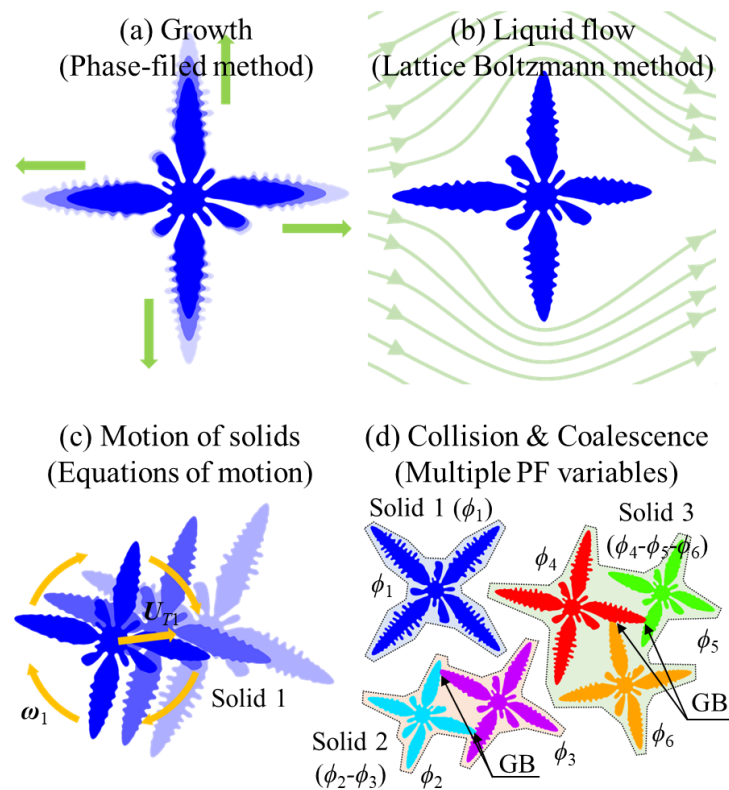


Fig.5.9 Phenomena that should be considered to express polycrystalline equiaxed solidification and methods to express those phenomena.

ボルツマン方程式, 固体の運動は運動方程式を解くことによってそれぞれ表現する. また, デンドライト同士の衝突と結合は, 新たに導入した複数のフェーズフィールド変数の相互作用によって表現する. 各現象の支配方程式を説明する.

計算領域内に存在する N 個の粒のうち i 番目の粒をフェーズフィールド変数 ϕ_i によって表現する. ここで, $\phi_i = +1$ は i 番目の粒が存在し, $\phi_i = -1$ はその他の粒か液相が存在することをそれぞれ示す. 複数デンドライトの成長は次式を用いて表現する.

$$\tau(\nabla\phi_i)\left(\frac{\partial\phi_i}{\partial t} + \mathbf{U}_{s\alpha} \cdot \nabla\phi_i\right) = \nabla\left[W(\nabla\phi_i)^2 \nabla\phi_i\right] + \sum_{r=x,y} \frac{\partial}{\partial r} \left[W(\nabla\phi_i) \frac{\partial W(\nabla\phi_i)}{\partial(\partial\phi_i/\partial r)} |\nabla\phi_i|^2 \right] - (-\phi_i + \phi_i^3) - \lambda^*(1 - \phi_i^2)^2 u \quad (5.16)$$

式(5.16)は固液界面においてのみ解かれる. τ はフェーズフィールド緩和時間, W は界面幅であり, それぞれ $\tau = \tau_0 a_s^2$ および $W = W_0 a_s$ で表される. $a_s(\nabla\phi)$ は立方晶の異方性を表現するための異方性関数であり, 式(5.2)で表される. λ^* は熱力学的駆動力の係数である. 固体の運動は式(5.16)の左辺第2項の ϕ_i の移流項によって表現される. ここで, $\mathbf{U}_{s\alpha}(\mathbf{x}, t)$ は, 位置 $\mathbf{x}$ と時刻 t における i 番目の粒とその他の粒で構成される α 番目の固体の運動速度である. 固液界面以外の固固界面や三重点, 多重点においては, 式(5.16)に代わり次式を解く.

$$\tau_0 \left(\frac{\partial\phi_i}{\partial t} + \mathbf{U}_{s\alpha} \cdot \nabla\phi_i \right) = W_0^2 \nabla^2 \phi_i - (-\phi_i + \phi_i^3) + \chi_i \quad (5.17)$$

式(5.17)は, 式(5.16)から界面の異方性と熱力学的駆動力を取り除いた式である. また, 式(5.17)において関係式 $\sum_{i=0}^N (\phi_i + 1)/2 = 1$ を満足させるために制約項を式(5.17)に導入した[209].

$$\chi_i = - \frac{(\phi_i + 1)^2}{\sum_{j=0}^N (\phi_j + 1)^2} \sum_{j=0}^N \left[W_0^2 \nabla^2 \phi_j - (-\phi_j + \phi_j^3) \right] \quad (5.18)$$

溶質濃度の時間発展方程式を次式に示す.

$$\begin{aligned} \frac{1}{2}[1+k+(1-k)\phi_0]\left(\frac{\partial u}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla u\right) = \nabla(D_l q(\phi_0)\nabla u - \mathbf{J}_{AT}) \\ - \frac{1}{2}[1+(1-k)u]\frac{\partial \phi_0}{\partial t} - \nabla \cdot \mathbf{J} \end{aligned} \quad (5.19)$$

ここで、 u は無次元溶質濃度であり $u = (C_l - C_l^e)/(C_l^e - C_s^e)$ で表される。ここで、 C_l と C_s は液相および固相の溶質濃度、 C_l^e と C_s^e は液相および液相の平衡溶質濃度をそれぞれ示している。 ϕ_0 は液相の存在を示すフェーズフィールド変数であり、 $\phi_0 = 1 - N - \sum_{i=1}^N (\phi_i)$ より算出される。なお、 ϕ_0 は $\phi_0 = +1$ において液相、 $\phi_0 = -1$ において固相をそれぞれ示す。本研究では、希薄溶体近似により、関係式 $k = C_s/C_l = C_s^e/C_l^e$ が成立すると仮定する[63]。なお、 k は分配係数である。 D_l と D_s はそれぞれ液相と固相の溶質拡散係数である。 $q(\phi_0)$ は補間関数であり、 $q(\phi_0) = [kD_s + D_l - (kD_s - D_l)\phi_0]/(2D_l)$ で与えられる。 $\mathbf{J}_{AT}$ は antitrapping 流束項[66]であり次式で与えられる。

$$\mathbf{J}_{AT} = -\frac{1}{2\sqrt{2}}\left(1 - \frac{kD_s}{D_l}\right)W_0[1+(1-k)u]\frac{\partial \phi_0}{\partial t} \frac{\nabla \phi_0}{|\nabla \phi_0|} \quad (5.20)$$

$\nabla \cdot \mathbf{J}$ はデンドライトの高次枝を生成するためのノイズ項である[161]。

液相流動は次式の格子ボルツマン方程式を解くことで表現する。

$$f_k(\mathbf{x} + \mathbf{c}_k \Delta t, t + \Delta t) = f_k(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_{LBM}}[f_k(\mathbf{x}, t) - f_k^{eq}(\mathbf{x}, t)] + G_k(\mathbf{x}, t)\Delta t \quad (5.21)$$

ここで、 $f_k(\mathbf{x}, t)$ は時刻 t 、位置 $\mathbf{x}$ において k 番目の離散速度方向 $\mathbf{c}_k$ に移動する粒子分布関数である。 τ_{LBM} は格子ボルツマン緩和時間である。液相の密度 ρ と流速 $\mathbf{U}$ はそれぞれ $\rho = \sum_{k=0}^{Q-1} f_k$ および $\mathbf{U} = \sum_{k=0}^{Q-1} \mathbf{c}_k f_k / \rho$ より算出される。ここで、 Q は離散速度の数である。 $f_k^{eq}(\mathbf{x}, t)$ は平衡分布関数であり、次式を用いる。

$$f_k^{eq}(\mathbf{x}, t) = w_k \rho \left[1 + \frac{3\mathbf{c}_k \cdot \mathbf{U}}{c^2} + \frac{9(\mathbf{c}_k \cdot \mathbf{U})^2}{2c^4} - \frac{3\mathbf{U} \cdot \mathbf{U}}{2c^2} \right] \quad (5.22)$$

ここで、 w_i は重み関数、 $c = \Delta x / \Delta t$ は格子速度である。なお、 Δx は格子幅、 Δt は時間増分である。 $G_k(\mathbf{x}, t)$ は離散外力項であり次式で表される。

$$G_k(\mathbf{x}, t) = w_k \rho \left[\frac{3(\mathbf{c}_k - \mathbf{U})}{c^2} + \frac{9(\mathbf{c}_k \cdot \mathbf{U})\mathbf{c}_k}{c^4} \right] \cdot \mathbf{G} \quad (5.23)$$

ここで、 $\mathbf{G}$ は固液界面における散逸抗力分布[83]であり、次式で表される。

$$\mathbf{G}(\mathbf{x}, t) = -\frac{2\rho\nu h}{W_0^2} \left(\frac{1-\phi_0}{2} \right)^2 (\mathbf{U} - \mathbf{U}_{s\alpha}) \quad (5.24)$$

ここで、 ν は動粘性係数であり $\nu = (\tau_{LBM} - 0.5)\Delta x^2 / (3\Delta t)$ で与えられる。また、 $h = 2.757$ は無次元定数[83]である。

固体は剛体と仮定する。 α 番目の固体の並進速度 $\mathbf{U}_{T\alpha}$ および角速度 $\boldsymbol{\omega}_\alpha$ はそれぞれ次式で表される。

$$M_\alpha \frac{d\mathbf{U}_{T\alpha}}{dt} = \mathbf{G}_\alpha \quad (5.25)$$

$$\mathbf{I}_\alpha \frac{d\boldsymbol{\omega}_\alpha}{dt} = \mathbf{T}_\alpha \quad (5.26)$$

ここで、 $\mathbf{G}_\alpha$ と $\mathbf{T}_\alpha$ は α 番目の固体に作用する力およびトルクの総和であり、次式で表される。

$$\mathbf{G}_\alpha = -\sum_{\mathbf{x} \in \Omega_\alpha} \mathbf{G}(\mathbf{x}, t) \Delta V + \left(1 - \frac{\rho_l}{\rho_s} \right) M_\alpha \mathbf{g} \quad (5.27)$$

$$\mathbf{T}_\alpha = -\sum_{\mathbf{x} \in \Omega_\alpha} \{ (\mathbf{x} - \mathbf{X}_\alpha) \times \mathbf{G}(\mathbf{x}, t) \Delta V \} \quad (5.28)$$

ここで、 Ω_α は α 番目の固体の固液界面領域であり、 $\Delta V = \Delta x^2$ は1格子分の体積である。 ρ_l と ρ_s はそれぞれ温度 T_0 、溶質濃度 C_0 における液相および固相の基準密度である。 $\mathbf{g}$ は重力ベクトル、 $\mathbf{X}_\alpha$ は α 番目の固体の重心を示している。 $\mathbf{G}_\alpha$ は抗力および浮力の総和として算出される。式(5.25)と式(5.26)中の M_α と $\mathbf{I}_\alpha$ は α 番目の固体の質量および慣性モーメントテンソルであり、次式で表される。

$$M_\alpha = \sum_{\mathbf{x} \in V_{s\alpha}} \{ \rho_s H(\phi_\alpha) \Delta V \} \quad (5.29)$$

$$\mathbf{I}_\alpha = - \sum_{\mathbf{x} \in V_{s\alpha}} \left\{ \rho_s H(\phi_\alpha) \begin{bmatrix} y_\alpha^2 + z_\alpha^2 & -x_\alpha \cdot y_\alpha & -x_\alpha \cdot z_\alpha \\ -y_\alpha \cdot x_\alpha & x_\alpha^2 + z_\alpha^2 & -y_\alpha \cdot z_\alpha \\ -z_\alpha \cdot x_\alpha & -z_\alpha \cdot y_\alpha & x_\alpha^2 + y_\alpha^2 \end{bmatrix} \Delta V \right\}, \quad (5.30)$$

ここで、 $V_{s\alpha}$ は α 番目の固体の固相領域を示している．関数 $H(\phi_\alpha)$ は次式で与えられる．

$$H(\phi_\alpha) = \begin{cases} 1, & (\phi_\alpha \geq 0) \\ 0, & (\phi_\alpha < 0) \end{cases} \quad (5.31)$$

ここで、 ϕ_α はある計算格子点における α 番目の固体に属する全フェーズフィールド変数の最大値を示している． $\mathbf{x}_\alpha$ は α 番目の固体の重心位置からの距離であり、 $\mathbf{x}_\alpha = (x_\alpha, y_\alpha, z_\alpha) = \mathbf{x} - \mathbf{X}_\alpha$ で与えられる．固体の運動速度 $\mathbf{U}_{s\alpha}$ は次式で表される．

$$\mathbf{U}_{s\alpha}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{U}_{T\alpha} + \boldsymbol{\omega}_\alpha \times (\mathbf{x} - \mathbf{X}_\alpha) \quad (5.32)$$

2個以上の固体が衝突した場合、完全非弾性衝突を仮定し、衝突した固体同士を即座に結合させる．このとき、異なる粒を表現するフェーズフィールド変数の分布が重なった時に、粒同士が衝突したと判定する．以降の計算では、ある格子点において2個以上の粒を表現するフェーズフィールド変数の値が全て閾値-0.2以上になった場合に、それらのフェーズフィールド変数が属する固体同士が結合し1個の固体になると判定する．固体同士が結合することで新たに生じた β 番目の固体について、その並進速度 $\mathbf{U}_{T\beta}$ と角速度 $\boldsymbol{\omega}_\beta$ は運動量および角運動量保存の法則に基づいて次式で表される．

$$\mathbf{U}_{T\beta} = \frac{\sum_{p \in S_\beta} M_p \mathbf{U}_{Tp}}{M_\beta} \quad (5.33)$$

$$\boldsymbol{\omega}_\beta = \mathbf{I}_\beta^{-1} \sum_{p \in S_\beta} \{ \mathbf{I}_p \boldsymbol{\omega}_p + M_p (\mathbf{X}_p - \mathbf{X}_\beta) \times \mathbf{U}_{Tp} \} \quad (5.34)$$

ここで、 S_β は結合することによって新たに β 番目の固体に属することになった固体の衝突前の番号の組である．

5.6 複数デンドライト成長の計算手法

5.6.1 Active parameter tracking 法

多数のフェーズフィールド変数を効率的に扱うために, active parameter tracking (APT) 法を導入する[200-201]. APT 法の概略を図 5.10 に示す. APT 法を導入しない場合, 図 5.10(b)に示すように, 複数のデンドライトの成長を計算するには, 各格子点において領域内に存在する粒の数だけフェーズフィールド変数を保存する必要がある. この方法は数百や数千のデンドライト成長を取り扱う場合には, 計算に必要なメモリのサイズが膨大になるため現実的な計算手法ではない. 一方, APT 法では, 図 5.10(c)に示すように各

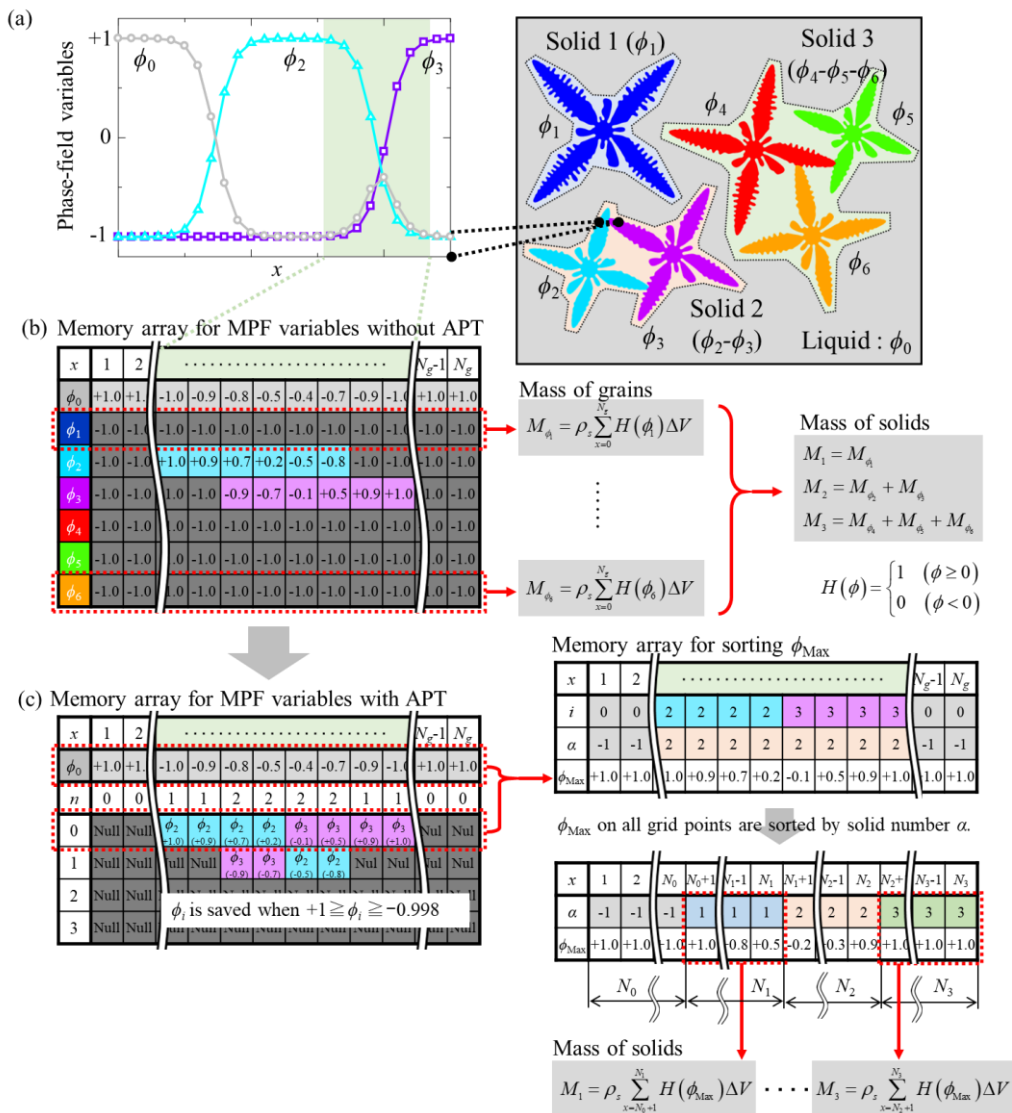


Fig.5.10 Schematic image of active parameter tracking method and computational scheme of mass of grains: (a) Profiles of multiple phase-field variables; Memory array for MPF variables on GPU (b) without and (c) with APT method.

格子点において同時に存在する最大のフェーズフィールド変数の数を予め設定し、各格子点上に存在する粒の粒番号およびフェーズフィールド変数の値のみを保存する。ここで、本フェーズフィールド計算モデルでは自由エネルギー関数のポテンシャル障壁項にダブルウェルポテンシャルを採用しているが、この場合、界面領域に明確な定義が存在しない。従って、本研究では、ある格子点においてフェーズフィールド変数が $-0.998 \leq \phi_i \leq +1$ の場合のみ粒番号 i とその値を保存すると設定した。後述の計算において、それぞれの格子点において保存するフェーズフィールド変数の最大数は 10 個とした。また、APT 法を導入した場合としない場合で、 α 番目の固体の質量 M_α や慣性モーメントテンソル $\mathbf{I}_\alpha$ 、作用する力 $\mathbf{G}_\alpha$ およびトルク $\mathbf{T}_\alpha$ の算出手順が異なる。例として図 5.10 中に M_α の計算手順を示す。APT 法を導入しない場合には、図 5.10(b)に示すように、各粒の質量 M_i を全格子点における $\rho_s H(\phi_i) \Delta V$ の総和より算出した後、それらを足し合わせて M_α を計算する。一方、APT 法を導入した場合には、まず、各格子点における $\rho_s H(\phi_i) \Delta V$ と固体番号をそれぞれ別に用意した 1 次元メモリ配列に保存し、固体番号をキーにソートかける。その後、 α 番目の固体のデータが連続に並ぶメモリ配列の範囲において総和計算を行うことで M_α を算出する。この時、APT を導入しない場合において全ての固体の質量の計算に掛かるコストは、固体の個数分の全格子点における総和計算である。一方、APT 法を導入した場合、計算コストは全格子点分のソート 1 回と固体の存在する格子点数分の総和計算である。そのため、ソートの計算コストが固体の個数分の総和計算を下回る場合においては、APT 法の導入によって計算が高速化すると考えられる。APT 法の導入が計算性能に与える影響を評価するために、APT 法を導入した場合としない場合の複数デンドライト成長の単一 GPU 計算を実施した。計算に用いる格子点数は $2,048^2$ 格子とし、粒の個数を 5, 10, 20, 30, 40, 50 と変えて計算を行った。図 5.11 に I/O 時間を除く 1,000 steps あたりの計算実行時間を粒の個数の関数として示す。ここで、計算は固体の運動を考慮する場合としない場合の両方を実施した。図 5.11 に示すように、APT 法を用いない場合、計算実行時間は粒の個数に対して線形に増加した。特に、固体の運動を考慮した場合、粒子数が 50 個の時に計算の実行時間が固体の運動を考慮しない場合の約 2.5 倍まで増加している。この実行時間の差は粒子数が大きくなるほど大きくなっている。APT を適用した固体の運動を考慮しない計算において、計算時間は粒子数に依存せず一定になっている。一方、APT 法を適用した固体の運動を伴う計算の実行時間は、粒の個数が 15 個未満の場合において、APT 法を用いない場合の結果よりも長くなった。これは、APT 法の導入に伴い M_α や $\mathbf{I}_\alpha$ 、 $\mathbf{G}_\alpha$ 、 $\mathbf{T}_\alpha$ の算出において追加されたソート処理がオーバーヘッドとなっているためである。しかしながら、粒の個数が 15 個以上の場合においては、APT 法を用いた計算の方が用いない計算よりも実行時間が短くなった。従って、APT 法の導入は、特に多数のフェーズフィールド変数を用いる場合において、計算時間を短縮するのに効果的であることが分かった。ここで、図 5.11 に示すように APT 法を用いた場合の計算においても、計算実行時間は粒の個数が増えるにつれ

てわずかに増加している。これは、粒子数増加に伴う固相率の増加により、 M_a や I_a , G_a , T_a を算出するための計算時間が増加したためであると考えられる。

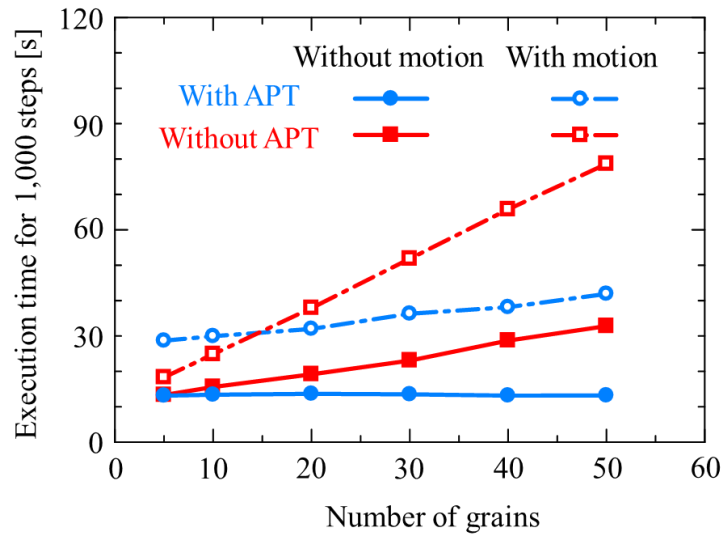


Fig.5.11 Computational performances with and without APT when changing the number of grains in the domain with 2048×2048 grid points. The execution time was measured for 1,000 steps in single GPU computation.

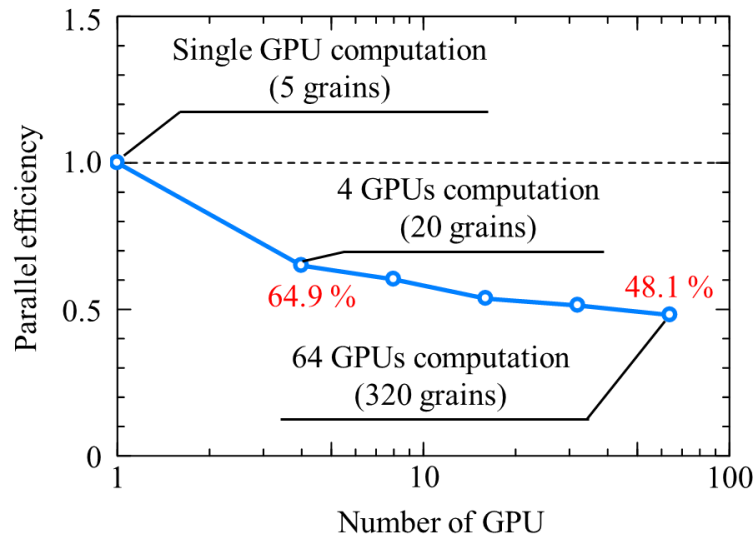


Fig.5.12 Parallel efficiency in multiple dendrites growth simulation with 2048×2048 grid points and 5 grains per one GPU. The parallel efficiency is computed as a ration of computational time of 1,000 steps excluding file I/O time to one by single GPU computation.

5.6.2 複数 GPU 並列計算

計算を加速させるために複数 GPU 並列計算の実装を行う。複数 GPU 並列計算では、全計算領域を x 方向と y 方向の 2 次元方向に分割し、分割した領域それぞれに GPU を 1 基割り当てて計算を行う。各計算ステップにおいて式(5.16), 式(5.17), 式(5.19), 式(5.21)の計算を行う前に、分割領域境界のデータの交換を行う。交換手順は次の通りである。まず、分割領域境界のデータを GPU から CPU に転送する。次に、隣接する分割領域を受け持つ CPU 間で分割領域境界のデータを MPI 通信により交換する。最後に、受け取ったデータを CPU から GPU に転送することで、分割領域境界のデータの交換を完了する。この時、 ϕ_i と u は式(5.16)と式(5.19)中の移流項の計算に 5 次精度の WENO を用いるため境界上の格子点のデータを 3 格子分転送し、 f_i については 1 格子分のデータを転送する。式(5.27)-(5.30)の総和計算は、まず、分割領域ごとに行われる。その後、各分割領域で総和計算した値を全並列プロセス間で再度総和計算することによって、全計算領域における各固体の M_α , I_α , G_α , T_α を算出する。本研究では、複数 GPU 並列計算コードの開発にあたり、C/C++言語をベースとして GPU 計算部分は CUDA を用いて記述した。また、ノード間通信には OpenMPI を用いた。次節の計算は東京工業大学の GPU スーパーコンピュータ TSUBAME3.0 を用いて実施した。

開発した複数 GPU 並列計算コードの並列計算性能を評価するために、弱スケーリング評価を実施した。弱スケーリング評価において、1 GPU あたりの格子点数を $2,048^2$ 格子、デンドライトの数を 5 個として、4~64 GPU の範囲で運動を伴う複数デンドライト成長計算を行う。図 5.12 に並列計算効率と GPU 数の関係を示す。ここで、並列計算効率は、複数 GPU 並列計算と単一 GPU 計算との I/O 時間を除く 1,000 steps あたりの計算実行時間の比で表される。GPU 数を増やすことで並列計算効率は徐々に減少し、4 GPU の場合は 64.9%、64 GPU の場合は 48.1%になった。この計算効率の低下は図 5.11 で見られた粒数の増加に伴う計算実行時間の増加に起因している。GPU 数の増加により計算性能は落ちるものの、従来の単一 GPU 計算と比べて 2 倍の計算実行時間で 64 倍の空間サイズおよび粒数の計算を実施できることは本計算手法の利点である。

5.7 等軸晶形成過程の再現計算

開発したコードを用いて、重力下において計算領域上端で核生成した複数の等軸デンドライトが成長しながら計算領域下部に降り注ぐシャワーリング計算を行う。ここで、計算に用いる物性値として SCN-3.0wt%acetone の値を用いた。各物性値は第 5 章 3 節の表 5.1 に示している。ここでは、計算を安定かつ高速に行うため、 $\tau_{LBM}=1$ とし、動粘性係数 ν は $4.23 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ とする。この ν の値は実験において測定された値[195]の約 1/142 の値である。また、それに対応して、 $\mathbf{g} = (0, -g_0/100)^T$ と設定する。なお、 $g_0 = 9.81 \text{ m/s}^2$ である。計算条件を図 5.13 に示す。計算領域サイズは $8.192 \times 8.192 \text{ mm}^2$ とし、 $16,384 \times 16,384$ 計算格子に分割する。計算開始時に、無次元過飽和度 $u_0 = -0.15$ の等温過冷却溶

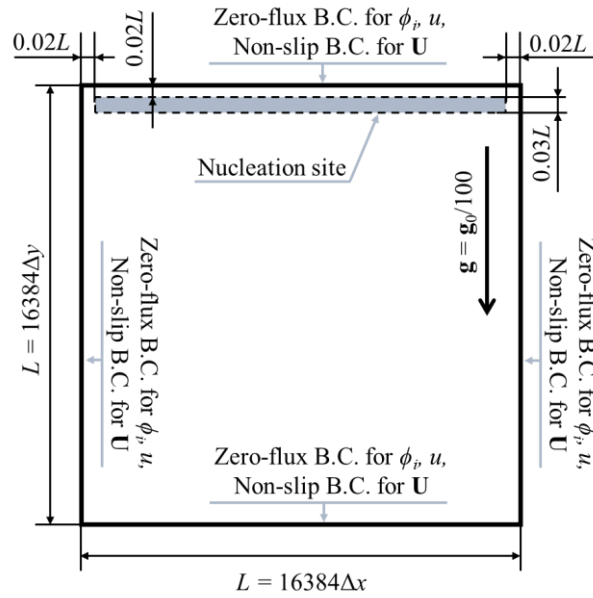


Fig.5.13 Computational conditions for the showering simulation of multiple equiaxed dendrites.

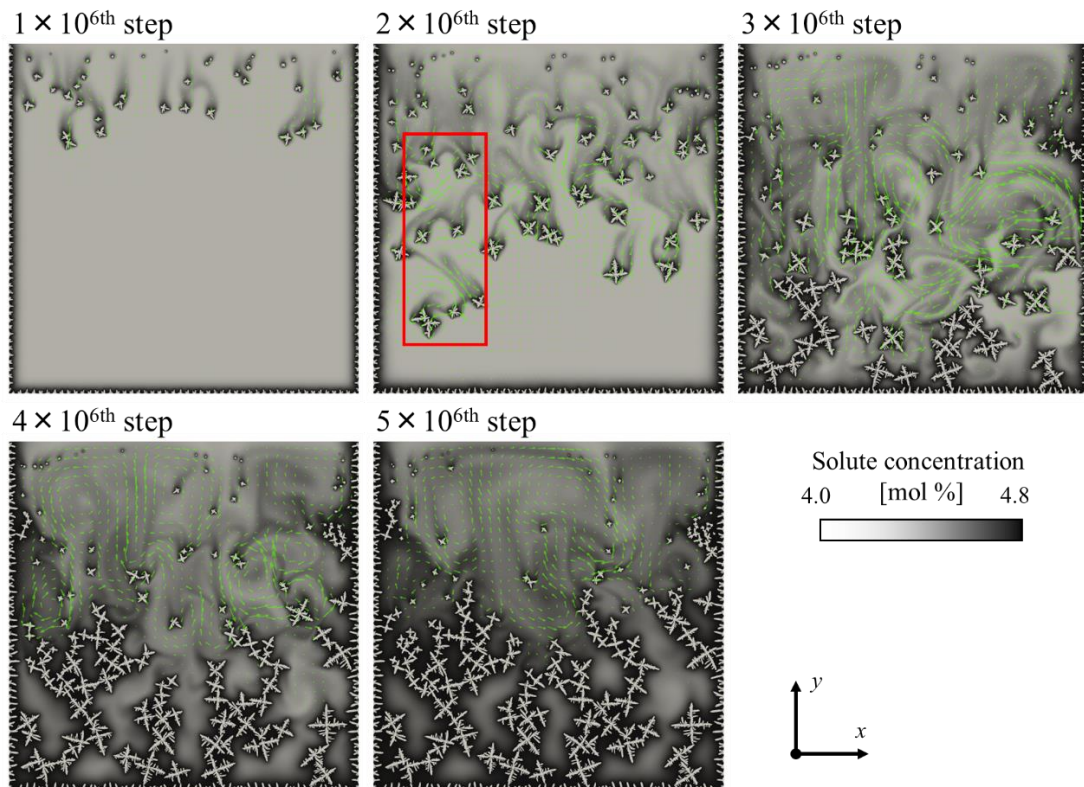


Fig.5.14 Time evolutions of distributions of solute concentration and flow velocity during showering of multiple equiaxed dendrites nucleated in the nucleation area located on the top of domain.

液で満たされた計算領域の上端を除く境界 3 辺に等間隔に 150 個の動かない半円状の固相核を配置する．計算中，図 5.13 に示す計算領域上端近傍の核生成領域において，25,000 steps おきにランダムな位置に等軸粒を 1 つ核生成する．計算領域の全ての境界

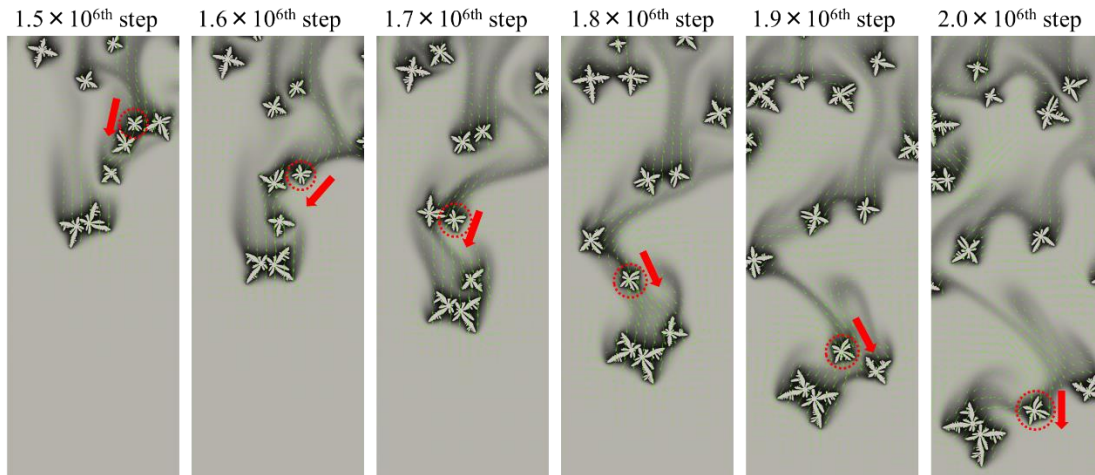


Fig.5.15 Interaction with the settling equiaxed dendrites in the enhanced view of the red frame in Fig. 5.14.

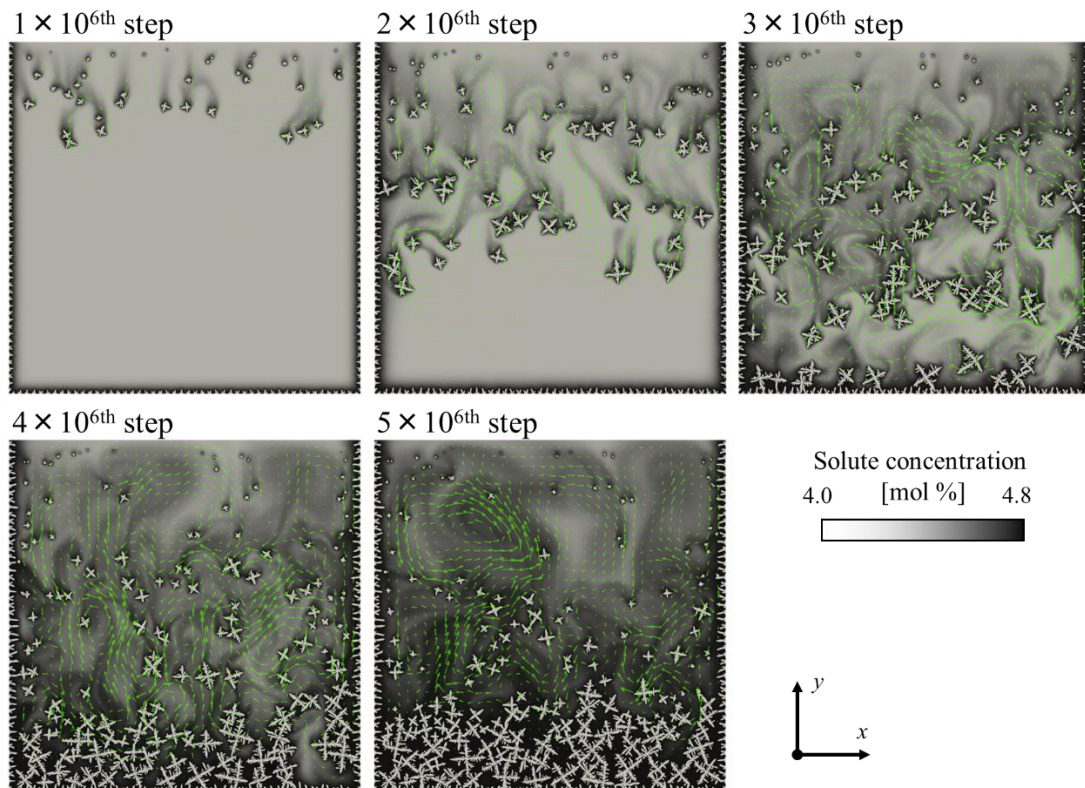


Fig.5.16 Results of sedimentation simulation without coalescence. The other conditions are same to those in Fig. 5.14.

に対して、 ϕ_i と u について零ノイマン境界条件、 $\mathbf{U}$ について滑りなし条件をそれぞれ適用する。計算には 64 GPU を用い、 5×10^6 time steps の計算を実施した。このとき、計算に要した実行時間は約 3.5 日であった。

図 5.14 に計算中の溶質濃度分布と流速分布の時間変化を示している。図 5.14 に示すように、計算領域上端近傍の核生成領域において生成した固相核が過冷却溶液中を沈降しながら等軸デンドライトへと成長し、計算領域底面に堆積した。図 5.14 中において赤枠で示す領域の 2×10^6 th time step 近傍の時刻の拡大図を図 5.15 に示す。図より、赤い円で示すデンドライトが先に沈降するデンドライトを追い掛けるように沈降している様子が確認できた。これは、先に沈降したデンドライトによって、後に続くデンドライトが沈降する経路が作られることを意味している。その結果、図 5.14 の 5×10^6 th time step において、堆積したデンドライトによっていくつかの搭状の構造が形成されている様子が確認できる。このように、開発手法によって最大 350 個のデンドライトを取り扱った大規模シャワーリング計算を可能としたが、本計算において堆積したデンドライトによって形成された凝固組織形態はかなり「不自然」であった。これは、2 個の固体の衝突時に必ず非弾性衝突および固体同士の結合が生じると仮定したためである。そのため、固体同士が衝突した際に結合させない仮定の下、図 5.14 と同様のシャワーリング計算を行った。図 5.14 と同様の示し方で図 5.16 に計算結果を示す。図 5.14 と図 5.16 を比較すると、 2×10^6 th step までは双方の計算で類似の沈降挙動が得られた。一方で、 3×10^6 th step 以降は等軸デンドライト沈降層の形成過程が両計算で異なる様子が確認できた。図 5.16 において形成された沈降層の組織形態は図 5.14 において見られる形態よりもより実現象において見られる形態と近いが、図 5.16 の計算においては固体同士が接触した際の力学的な相互作用が考慮できていない。固体が接触する問題を考える場合、力学的な相互作用と固固界面および固液界面の界面エネルギーの相互作用を同時に考慮する必要がある。これは今後の課題である。

5.8 結言

本章では、液相中を運動するデンドライトの成長挙動を評価するために、二元合金の等温過冷却溶液中において沈降しながら成長する等軸デンドライトを効率的に評価可能な 2 次元計算手法の開発を行った。開発手法において、デンドライトの長距離沈降を取り扱えるようにフェーズフィールド格子ボルツマンモデルに計算領域移動法を適用した。さらに、複数格子法と GPU 計算を適用することで計算を高速化した。開発手法を用いた単一デンドライト沈降計算を実施し、計算領域幅の約 3 倍の距離を沈降するデンドライトの成長を効率的に表現できることを確認した。この計算において、重心位置、沈降速度、デンドライト一次枝の成長速度の時間変化をそれぞれ評価した。その後、計算モデルを固体の運動と衝突、結合、その後の粒成長を伴うフェーズフィールド格子ボルツマンモデルへと拡張し、active parameter tracking 法と複数 GPU 並列計算を適用する

ことで、等軸多結晶凝固の大規模 2 次元計算を可能とした。開発手法を用いて、計算領域上端近傍において生成した固相核が等軸デンドライトへと成長しながら沈降し計算領域底部に堆積するシャワーリング計算を最大 350 個のデンドライトを取り扱って実施可能であることを示した。さらに、衝突した固体の結合を考慮した場合としない場合の計算結果を比較した。ここで、衝突時の結合を考慮した計算においては、搭状に堆積した等軸多結晶構造が得られた。それに対して、衝突時の結合を考慮しない場合の計算においては、等軸デンドライトが計算領域底面に均一に堆積した。このように、計算より得られる等軸多結晶構造は固体同士の結合モデルに依存して変化するため、今後、固体が衝突した場合のより詳細なモデリングが必要であると結論付けた。

6. 結言

高性能な金属製品の製造開発には、凝固組織の高精度な予測と制御が極めて重要である。典型的な凝固組織形態はデンドライト（樹枝状結晶）であるが、高温かつ不透明な金属・合金の凝固過程を観察することは困難であり、数値計算による評価が不可欠である。フェーズフィールド法はデンドライト凝固を高精度に再現可能な唯一の数値モデルであるが、計算コストが高く、組織評価において重要な3次元問題における複数デンドライト組織の再現はこれまで不可能であった。本研究では、デンドライト凝固組織の高精度予測に向けた大規模フェーズフィールド計算手法を確立することを目的として、マルチフィジックス凝固のためのフェーズフィールドモデルについて **graphics processing unit (GPU)** を複数用いた並列計算をベースとした大規模計算手法を構築した。さらに、構築手法を用いて **GPU** スーパーコンピュータ上において大規模計算を行うことで、金属材料の凝固過程において重要な問題を数値計算によって初めて高精度に評価した。本研究により得られた成果を以下に示す。

第2章では、一方向凝固過程における複数柱状デンドライトの競合成長挙動評価を可能とするべく、計算効率化のために計算領域移動法を実装した二元合金一方向凝固のための定量的フェーズフィールドモデルの複数 **GPU** 並列3次元計算コードを開発した。その後、開発手法を用いて並列計算性能評価を行い、良好なスケーリングが得られることを示した。また、開発手法を用いた大規模な3次元一方向凝固計算によって、単結晶、二結晶、多結晶中の柱状デンドライトの競合成長計算を実施した。単結晶計算においては、一次枝配列が六角形配列を取ることを発見した。二結晶計算においては、温度勾配方向に成長するデンドライトを傾いたデンドライトが淘汰する普通でない淘汰現象を解明した。多結晶計算においては、優先成長方向と温度勾配方向の傾きが小さい粒ほど長く成長し続けることを確認し、2次元や3次元二結晶などの特別な条件とは競合成長形態が異なることを示した。

第3章では、凝固において重要な液相流動を考慮したデンドライト成長の大規模フェーズフィールド計算手法を構築した。液相流動の計算にアルゴリズムがシンプルで並列化が容易な格子ボルツマン法を用いて、 $1,536 \times 1,536 \times 3,072$ 格子を用いた世界最大のフェーズフィールド格子ボルツマン凝固計算を可能とした。さらに、開発手法を強制対流や自然対流を伴うデンドライト成長問題の評価に適用した。強制対流の問題では、単一の等軸デンドライトの優先成長方向と流動方向を変えた系統的な計算を行い、デンドライト成長速度と流動方向の関係を明らかにした。自然対流の問題では、一方向凝固過程における複数デンドライトの競合成長計算を行い、重力が一次枝間隔と配列に及ぼす影響を明らかにした。さらに、デンドライト樹間液相の透過率算出法を構築し、複数柱状デンドライトに対する透過率を数値計算手法によって初めて求めた。また、柱状晶の成長方向に対する垂直方向流れは、比界面積による無次元透過率を用いることで、正六角

形配列の円柱周り流れに近似できることを示した。

第4章では固液相変態，熱・溶質拡散，液相流動を考慮したマルチフィジックス凝固現象を大規模に計算可能な手法を構築した。この時，複数時間増分法と複数格子法の適用によって，全ての場と同じ格子幅と時間増分を用いた場合の計算よりも約100倍の高速化を達成した。さらに，複数時間増分法と複数格子法を実装した複数GPU並列計算によって，良好なスケーリングを達成できることを示した。最後に，熱溶質対流を伴う複数デンドライト成長計算を実施し，構築手法の有用性を示した。

第5章では，液相中を運動しながら成長するデンドライトの大規模計算法を構築した。まず，単一デンドライトの長距離落下中の成長挙動評価を可能とするため，計算領域移動法を適用したGPU計算コードを開発した。また，2次元問題における大規模計算を実行し，落下によるデンドライト一次枝成長速度の変化を明らかにした。さらに，多数のデンドライトの運動を伴う成長，衝突と合体，その後の粒成長を考慮した多結晶凝固問題を，大規模に再現可能な手法を開発した。この時，複数のフェーズフィールド変数の取り扱いを効率化する active parameter tracking 法と複数GPU並列計算を適用した。また，本手法を用いることで， $16,384 \times 16,384$ 格子を用いた領域に対する大規模計算を実行し，最大350個の等軸デンドライトを取り扱った等軸晶のシャワーリング計算を可能とした。さらに，計算より得られる等軸多結晶構造が固体衝突時の結合モデルに依存することを明らかにし，固体が衝突した場合のより詳細なモデリングが必要であると結論付けた。

以上の評価はいずれも高性能計算手法を適用した大規模フェーズフィールド計算によって初めて実現されたものであり，当該分野に大きなインパクトを与えた。また，本手法は多様な凝固現象に適用可能であり，凝固学に対して今後多大な貢献が期待できる。

参考文献

- [1] K. Ushioda, M. Yoshimura, H. Kaidoh and K. Kimura, "History of Utilization of Alloying Elements in Steels and Its Future Perspectives", *Tetsu-to-Hagane*, 100 (2014) 716-727.
- [2] H. Conrad and J. Narayan, "On the grain size softening in nanocrystalline materials", *Scripta Mater.*, 42 (2000) 1025-1030.
- [3] D. Jia, K.T. Ramesh and E. Ma, "Effects of nanocrystalline and ultrafine grain sizes on constitutive behavior and shear bands in iron", *Acta Mater.*, 51 (2003) 3495-3509.
- [4] H.S. Park, R.E. Rudd, R.M. Cavallo, N.R. Barton, A. Arsenlis, J.L. Belof, K.J. Blobaum, B.S. El-dasher, J.N. Florando, C.M. Huntington, B.R. Maddox, M.J. May, C. Plechaty, S.T. Prisbrey, B.A. Remington, R.J. Wallace, C.E. Wehrenberg, M.J. Wilson, A.J. Comley, E. Giraldez, A. Nikroo, M. Farrell, G. Randall and G.T. Gray III, "Grain-size-independent plastic flow at ultrahigh pressures and strain rates", *Phys. Rev. Lett.*, 114 (2015) 065502.
- [5] M. Rappaz, "Modelling of microstructure formation in solidification processes", *Int. Mater. Rev.*, 34 (1989) 93-124.
- [6] C. Beckermann and C.Y. Wang, "Multiphase/-Scale Modeling of Alloy Solidification", *Annu. Rev. Heat Transf.*, 6 (1995) 115-198.
- [7] C. Beckermann, "Modelling of macrosegregation: applications and future needs", *Int. Mater. Rev.*, 47 (2002) 243-261.
- [8] J.A. Dantzig and M. Rappaz, "Solidification", EPFL press (2009).
- [9] T.F. Bower and M.C. Flemings, "Structure of Dendrites at Chill Surfaces", *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, 239 (1967) 1620-1625.
- [10] C. Beckermann and C.Y. Wang, "Equiaxed dendritic solidification with convection: Part III. Comparisons with $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ experiments", *Metall. Mater. Trans. A*, 27 (1996) 2784-2795.
- [11] A. Ramani and C. Beckermann, "Dendrite tip growth velocities of settling NH_4Cl equiaxed crystals", *Scripta Mater.*, 36 (1997) 633-638.
- [12] B. Appolaire, V. Albert, H. Combeau and G. Lesoult, "Free growth of equiaxed crystals settling in undercooled $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ melts", *Acta Mater.*, 46 (1998) 5851-5862.
- [13] B. Appolaire, V. Albert, H. Combeau and G. Lesoult, "Experimental Study of Free Growth of Equiaxed NH_4Cl Crystals Settling in Undercooled $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ Melts", *ISIJ Int.*, 39 (1999) 263-270.
- [14] A. Badillo, D. Ceynar and C. Beckermann, "Growth of equiaxed dendritic crystals settling in an undercooled melt, Part 2: Internal solid fraction", *J. Cryst. Growth*, 309 (2007) 216-224.
- [15] A. Badillo, D. Ceynar and C. Beckermann, "Growth of equiaxed dendritic crystals settling in an undercooled melt, Part 1: Tip kinetics", *J. Cryst. Growth*, 309 (2007) 197-215.
- [16] M.E. Glicksman, R.J. Schaefer and J.D. Ayers, "Dendritic growth-A test of theory", *Metall.*

- Trans. A*, 7 (1976) 1747-1759.
- [17] Y.-W. Lee, R. Ananth and W.N. Gill, "Selection of a length scale in unconstrained dendritic growth with convection in the melt", *J. Cryst. Growth*, 132 (1993) 226-230.
- [18] R. Ananth and W.N. Gill, "Dendritic growth in microgravity and forced convection", *J. Cryst. Growth*, 179 (1997) 263-276.
- [19] M.B. Koss, J.C. LaCombe, L.A. Tennenhouse, M.E. Glicksman and E.A. Winsa, "Dendritic Growth tip velocities and radii of curvature in microgravity", *Metall. Mater. Trans. A*, 30 (1999) 3177-3190.
- [20] C. Beckermann, Q. Li and X. Tong, "Microstructure evolution in equiaxed dendritic growth", *Sci. Tech. Adv. Mater.*, 2 (2001) 117-126.
- [21] M.A. Chopra, M.E. Glicksman and N.B. Singh, "Dendritic solidification in binary alloys", *Metall. Trans. A*, 19 (1988) 3087-3096.
- [22] I. Farup, J.M. Drezet and M. Rappaz "In situ observation of hot tearing formation in succinonitrile-acetone", *Acta Mater.*, 49 (2001) 1261-1269.
- [23] N. Bergeon, A. Ramirez, L. Chen, B. Billia, J. Gu and R. Trivedi, "Dynamics of interface pattern formation in 3D alloy solidification: first results from experiments in the DECLIC directional solidification insert on the International Space Station", *J. Mater. Sci.*, 46 (2011) 6191-6202.
- [24] C. Beckermann and R. Viskanta, "Double-diffusive convection during dendritic solidification of a binary mixture", *Physicochemical Hydrodynamics*, 10 (1988) 195-213.
- [25] M.S. Christenson, W.D. Bennon and F.P. Incropera, "Solidification of an aqueous ammonium chloride solution in a rectangular cavity—II. Comparison of predicted and measured results", *Int. J. Heat Mass Transfer*, 32 (1989) 69-79.
- [26] C.F. Chen and F. Chen, "Experimental study of directional solidification of aqueous ammonium chloride solution", *J. Fluid Mech.*, 227 (1991) 567-586.
- [27] M.H. McCay, T.D. McCay and J.A. Hopkins, "The nature and influence of convection on the directional dendritic solidification of a metal alloy analog, NH_4Cl , and H_2O ", *Metall. Trans. B*, 24 (1993) 669-675.
- [28] R.H. Mathiesen, L. Arnberg, F. Mo, T. Weitkamp and A. Snigirev, "Time Resolved X-Ray Imaging of Dendritic Growth in Binary Alloys", *Phys. Rev. Lett.*, 83 (1999) 5062-5065.
- [29] H. Yasuda, I. Ohnaka, K. Kawasaki, A. Sugiyama, T. Ohmichi, J. Iwane and K. Umetani, "Direct observation of stray crystal formation in unidirectional solidification of Sn–Bi alloy by X-ray imaging", *J. Cryst. Growth*, 262 (2004) 645-652.
- [30] R.H. Mathiesen and L. Arnberg, "X-ray radiography observations of columnar dendritic growth and constitutional undercooling in an Al–30wt%Cu alloy", *Acta Mater.*, 53 (2005) 947-956.

- [31] D. Ruvalcaba, R.H. Mathiesen, D.G. Eskin, L. Arnberg and L. Katgerman, "In situ observations of dendritic fragmentation due to local solute-enrichment during directional solidification of an aluminum alloy", *Acta Mater.*, 55 (2007) 4287-4292.
- [32] H. Yasuda, Y. Yamamoto, N. Nakatsuka, T. Nagira, M. Yoshiya, A. Sugiyama, I. Ohnaka, K. Umetani and K. Uesugi, "In situ observation of nucleation, fragmentation and microstructure evolution in Sn-Bi and Al-Cu alloys", *Int. J. Cast Met. Res.*, 21 (2008) 125-128.
- [33] H. Nguyen-Thi, A. Bogno, G. Reinhart, B. Billia, R.H. Mathiesen, G. Zimmermann, Y. Houltz, K. Löth, D. Voss, A. Verga and F.d. Pascale, "Investigation of gravity effects on solidification of binary alloys within situ X-ray radiography on earth and in microgravity environment", *J. Phys. Conf. Ser.*, 327 (2011) 012012.
- [34] E. Liotti, A. Lui, R. Vincent, S. Kumar, Z.P. Guo, T. Connolley, M. Hart, L. Arnberg, R.H. Mathiesen and P.S. Grant, "A Synchrotron X-Ray Radiography Investigation of Induced Dendrite Fragmentation in Al-15wt%Cu", *Mater. Sci. Forum*, 765 (2013) 210-214.
- [35] N. Shevchenko, S. Boden, G. Gerbeth and S. Eckert, "Chimney formation in solidifying Ga-25wt pct In alloys under the influence of thermosolutal melt convection", *Metall. Mater. Trans. A*, 44 (2013) 3797-3808.
- [36] E. Liotti, A. Lui, R. Vincent, S. Kumar, Z. Guo, T. Connolley, I.P. Dolbnya, M. Hart, L. Arnberg, R.H. Mathiesen and P.S. Grant, "A synchrotron X-ray radiography study of dendrite fragmentation induced by a pulsed electromagnetic field in an Al-15Cu alloy", *Acta Mater.*, 70 (2014) 228-239.
- [37] G. Salloum-Abou-Jaoude, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, R.H. Mathiesen, G. Zimmermann and D. Voss, "Characterization of Motion of Dendrite Fragment by X-Ray Radiography on Earth and under Microgravity Environment", *Mater. Sci. Forum*, 790-791 (2014) 311-316.
- [38] F. Li, J. Zhang, Y. Dai, F. Bian, Y. Fu, F. Yin and B. Sun, "In situ study the effect of refiner on the microstructure evolution of variable cross-section structure by synchrotron X-ray radiography", *J. Cryst. Growth*, 428 (2015) 1-7.
- [39] L. Abou-Khalil, G. Salloum-Abou-Jaoude, G. Reinhart, C. Pickmann, G. Zimmermann and H. Nguyen-Thi, "Influence of gravity level on Columnar-to-Equiaxed Transition during directional solidification of Al – 20 wt.% Cu alloys", *Acta Mater.*, 110 (2016) 44-52.
- [40] J.W. Gibbs, D. Tournet, P.J. Gibbs, S.D. Imhoff, M.J. Gibbs, B.A. Walker, K. Fezzaa and A.J. Clarke, "In Situ X-Ray Observations of dendritic fragmentation during directional solidification of a Sn-Bi alloy", *JOM*, 68 (2016) 170-177.
- [41] E. Liotti, A. Lui, S. Kumar, Z. Guo, C. Bi, T. Connolley and P.S. Grant, "The spatial and temporal distribution of dendrite fragmentation in solidifying Al-Cu alloys under different conditions", *Acta Mater.*, 121 (2016) 384-395.
- [42] A.J. Clarke, D. Tournet, Y. Song, S.D. Imhoff, P.J. Gibbs, J.W. Gibbs, K. Fezzaa and A.

- Karma, "Microstructure selection in thin-sample directional solidification of an Al-Cu alloy: In situ X-ray imaging and phase-field simulations", *Acta Mater.*, 129 (2017) 203-216.
- [43] J. Wang, X. Lin, Y. Fautrelle, H. Nguyen-Thi and Z. Ren, "Motion of Solid Grains During Magnetic Field-Assisted Directional Solidification", *Metall. Mater. Trans. B*, 49 (2018) 861-865.
- [44] R. Kobayashi, "Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth", *Physica D*, 63 (1993) 410-423.
- [45] A. Karma and W.-J. Rappel, "Phase-field method for computationally efficient modeling of solidification with arbitrary interface kinetics", *Phys. Rev. E*, 53 (1996) R3017-R3020.
- [46] 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).
- [47] S.G.R. Brown, T. Williams and J.A. Spittle, "A cellular automaton model of the steady-state "free" growth of a non-isothermal dendrite", *Acta Metall. Mater.*, 42 (1994) 2893-2898.
- [48] R. Sasikumar and R. Sreenivasan, "Two dimensional simulation of dendrite morphology", *Acta Metall. Mater.*, 42 (1994) 2381-2386.
- [49] Y.H. Shin and C.P. Hong, "Modeling of Dendritic Growth with Convection Using a Modified Cellular Automaton Model with a Diffuse Interface", *ISIJ Int.*, 42 (2002) 359-367.
- [50] M.F. Zhu, S.Y. Lee and C.P. Hong, "Modified cellular automaton model for the prediction of dendritic growth with melt convection", *Phys. Rev. E*, 69 (2004) 061610.
- [51] M. Zhu, "Modeling of dendritic growth in the presence of convection", *Science in China Series E*, 48 (2005).
- [52] M.-F. Zhu, T. Dai, S.-Y. Lee and C.-P. Hong, "Modeling of solutal dendritic growth with melt convection", *Comput. Math. with Appl.*, 55 (2008) 1620-1628.
- [53] L. Wei, X. Lin, M. Wang and W. Huang, "Orientation selection of equiaxed dendritic growth by three-dimensional cellular automaton model", *Physica B*, 407 (2012) 2471-2475.
- [54] L. Wei, X. Lin, M. Wang and W. Huang, "A cellular automaton model for a pure substance solidification with interface reconstruction method", *Comput. Mater. Sci.*, 54 (2012) 66-74.
- [55] B. Jelinek, M. Eshraghi, S. Felicelli and J.F. Peters, "Large-scale parallel lattice Boltzmann-cellular automaton model of two-dimensional dendritic growth", *Comput. Phys. Commun.*, 185 (2014) 939-947.
- [56] R. Chen, Q. Xu and B. Liu, "Cellular automaton simulation of three-dimensional dendrite growth in Al-7Si-Mg ternary aluminum alloys", *Comput. Mater. Sci.*, 105 (2015) 90-100.
- [57] M. Eshraghi, B. Jelinek and S.D. Felicelli, "Large-Scale Three-Dimensional Simulation of Dendritic Solidification Using Lattice Boltzmann Method", *JOM*, 67 (2015) 1786-1792.
- [58] A. Kao, I. Krastins, M. Alexandrakis, N. Shevchenko, S. Eckert and K. Pericleous, "A Parallel Cellular Automata Lattice Boltzmann Method for Convection-Driven Solidification",

- JOM*, 71 (2018) 48-58.
- [59] R. Kobayashi, "A Numerical Approach to Three-Dimensional Dendritic Solidification", *Exp. Math.*, 3 (1994) 59-81.
- [60] G. Caginalp, "Stefan and Hele-Shaw type models as asymptotic limits of the phase-field equations", *Phys. Rev. A*, 39 (1989) 5887-5896.
- [61] S.-L. Wang and R.F. Sekerka, "Computation of the dendritic operating state at large supercoolings by the phase field model", *Phys. Rev. E*, 53 (1996) 3760-3776.
- [62] A. Karma and W.-J. Rappel, "Quantitative phase-field modeling of dendritic growth in two and three dimensions", *Phys. Rev. E*, 57 (1998) 4323-4349.
- [63] S.G. Kim, W.T. Kim and T. Suzuki, "Phase-field model for binary alloys", *Phys. Rev. E*, 60 (1999) 7186-7197.
- [64] R.F. Almgren, "Second-Order Phase Field Asymptotics for Unequal Conductivities", *SIAM J. Appl. Math.*, 59 (1999) 2086-2107.
- [65] A. Karma, "Phase-Field Formulation for Quantitative Modeling of Alloy Solidification", *Phys. Rev. Lett.*, 87 (2001) 115701.
- [66] M. Ohno and K. Matsuura, "Quantitative phase-field modeling for dilute alloy solidification involving diffusion in the solid", *Phys. Rev. E*, 79 (2009) 031603.
- [67] M. Ohno, "Quantitative phase-field modeling of nonisothermal solidification in dilute multicomponent alloys with arbitrary diffusivities", *Phys. Rev. E*, 86 (2012) 051603.
- [68] A. Karma and W.-J. Rappel, "Numerical Simulation of Three-Dimensional Dendritic Growth", *Phys. Rev. Lett.*, 77 (1996) 4050-4053.
- [69] A. Karma, Y.H. Lee and M. Plapp, "Three-dimensional dendrite-tip morphology at low undercooling", *Phys. Rev. E*, 61 (2000) 3996-4006.
- [70] C.W. Lan, Y.C. Chang and C.J. Shih, "Adaptive phase field simulation of non-isothermal free dendritic growth of a binary alloy", *Acta Mater.*, 51 (2003) 1857-1869.
- [71] J.J. Li, J.C. Wang, Q. Xu and G.C. Yang, "Comparison of Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov (JMAK) kinetics with a phase field simulation for polycrystalline solidification", *Acta Mater.*, 55 (2007) 825-832.
- [72] Y. Chen, D.Z. Li, B. Billia, H. Nguyen-Thi, X.B. Qi and N.M. Xiao, "Quantitative Phase-field Simulation of Dendritic Equiaxed Growth and Comparison with in Situ Observation on Al – 4 wt.% Cu Alloy by Means of Synchrotron X-ray Radiography", *ISIJ Int.*, 54 (2014) 445-451.
- [73] W.J. Boettinger and J. A. Warren, "Simulation of the cell to plane front transition during directional solidification at high velocity", *J. Cryst. Growth*, 200 (1999) 583-591.
- [74] H.J. Diepers, D. Ma and I. Steinbach, "History effects during the selection of primary dendrite spacing. Comparison of phase-field simulations with experimental observations", *J.*

- Cryst. Growth*, 237-239 (2002) 149-153.
- [75] M. Ode, T. Koyama, H. Onodera and T. Suzuki, "Phase-field modeling for Sn-Bi soldering", *J. Electron. Mater.*, 32 (2003) 1534-1539.
- [76] I. Steinbach, "Effect of interface anisotropy on spacing selection in constrained dendrite growth", *Acta Mater.*, 56 (2008) 4965-4971.
- [77] S. Gurevich, M. Amooezaei and N. Provatas, "Phase-field study of spacing evolution during transient growth", *Phys. Rev. E*, 82 (2010) 051606.
- [78] S. Gurevich, A. Karma, M. Plapp and R. Trivedi, "Phase-field study of three-dimensional steady-state growth shapes in directional solidification", *Phys. Rev. E*, 81 (2010) 011603.
- [79] J. Li, Z. Wang, Y. Wang and J. Wang, "Phase-field study of competitive dendritic growth of converging grains during directional solidification", *Acta Mater.*, 60 (2012) 1478-1493.
- [80] T. Takaki, M. Ohno, T. Shimokawabe and T. Aoki, "Two-dimensional phase-field simulations of dendrite competitive growth during the directional solidification of a binary alloy bicrystal", *Acta Mater.*, 81 (2014) 272-283.
- [81] D. Tourret and A. Karma, "Growth competition of columnar dendritic grains: A phase-field study", *Acta Mater.*, 82 (2015) 64-83.
- [82] T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe and T. Aoki, "Two-dimensional phase-field study of competitive grain growth during directional solidification of polycrystalline binary alloy", *J. Cryst. Growth*, 442 (2016) 14-24.
- [83] C. Beckermann, H.J. Diepers, I. Steinbach, A. Karma and X. Tong, "Modeling Melt Convection in Phase-Field Simulations of Solidification", *J. Comput. Phys.*, 154 (1999) 468-496.
- [84] D.M. Anderson, G.B. McFadden and A.A. Wheeler, "A phase-field model of solidification with convection", *Physica D*, 135 (2000) 175-194.
- [85] A. Subhedar, I. Steinbach and F. Varnik, "Modeling the flow in diffuse interface methods of solidification", *Phys. Rev. E*, 92 (2015) 023303.
- [86] D. Medvedev and K. Kassner, "Lattice Boltzmann scheme for crystal growth in external flows", *Phys. Rev. E*, 72 (2005) 056703.
- [87] X. Tong, C. Beckermann and A. Karma "Velocity and Shape Selection of Dendritic Crystals in a Forced Flow", *Phys. Rev. E*, 61 (2001) R49-R52.
- [88] X. Tong, C. Beckermann, A. Karma and Q. Li "Phase-field simulations of dendritic crystal growth in a forced flow", *Phys. Rev. E*, 63 (2001) 061601.
- [89] Y. Natsume, K. Ohsasa and T. Narita, "Investigation of the Mechanism of Alloy Dendrite Deflection due to Flowing Melt by Phase-Field Simulation", *Mater. Trans.*, 43 (2002) 2228-2234.
- [90] J.-H. Jeong, J.A. Dantzig and N. Goldenfeld, "Dendritic growth with fluid flow in pure

- materials", *Metall. Mater. Trans. A*, 34 (2003) 459-466.
- [91] C.W. Lan and C.J. Shih, "Phase field simulation of non-isothermal free dendritic growth of a binary alloy in a forced flow", *J. Cryst. Growth*, 264 (2004) 472-482.
- [92] D. Medvedev and K. Kassner, "Lattice-Boltzmann scheme for dendritic growth in presence of convection", *J. Cryst. Growth*, 275 (2005) e1495-e1500.
- [93] D. Medvedev, T. Fischaleck and K. Kassner, "Influence of external flows on crystal growth: numerical investigation", *Phys. Rev. E*, 74 (2006) 031606.
- [94] R. Siquieri, J. Rezende, J. Kundin and H. Emmerich, "Phase-field simulation of a Fe-Mn alloy under forced flow conditions", *Eur. Phys. J. ST*, 177 (2009) 193-205.
- [95] Z. Guo, J. Mi and P.S. Grant, "Phase field simulation of multi-dendrite growth in a coupled thermal-solute-convective environment", *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, 33 (2012) 012101.
- [96] H. Neumann-Heyme, K. Eckert and S. Odenbach, "Free dendrite growth under modulated flow in pure substances: two-dimensional phase-field simulations", *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, 27 (2011) 012045.
- [97] H. Neumann-Heyme, K. Eckert, A. Voigt and S. Odenbach, "Growth of a free dendrite in pure substances under modulated flow conditions", *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, 33 (2012) 012106.
- [98] Z. Guo, J. Mi, S. Xiong and P.S. Grant, "Phase Field Simulation of Binary Alloy Dendrite Growth Under Thermal- and Forced-Flow Fields: An Implementation of the Parallel-Multigrid Approach", *Metall. Mater. Trans. B*, 44 (2013) 924-937.
- [99] Z. Guo, J. Mi, S. Xiong and P.S. Grant, "Phase field study of the tip operating state of a freely growing dendrite against convection using a novel parallel multigrid approach", *J. Comput. Phys.*, 257 (2014) 278-297.
- [100] M.X. Liu, K. Wang, D. Xia and T. Jiang, "Phase field simulation of Al-Si binary dendritic growth and micro-segregation patterns under convection", *J. Alloys Compd.*, 589 (2014) 431-435.
- [101] R. Tönhardt and G. Amberg, "Simulation of natural convection effects on succinonitrile crystals", *Phys. Rev. E*, 62 (2000) 828-836.
- [102] I. Steinbach, "Pattern formation in constrained dendritic growth with solutal buoyancy", *Acta Mater.*, 57 (2009) 2640-2645.
- [103] X.B. Qi, Y. Chen, X.H. Kang and D.Z. Li, "The Effect of Natural Convection on Equiaxed Dendritic Growth: Quantitative Phase-Field Simulation and Comparison with Synchrotron X-Ray Radiography Monitoring Data", *Adv. Mater. Sci. Eng.*, 2016 (2016) 1-10.
- [104] J.-H. Jeong, N. Goldenfeld and J.A. Dantzig, "Phase field model for three-dimensional dendritic growth with fluid flow", *Phys. Rev. E*, 64 (2001) 041602.
- [105] Y. Lu, C. Beckermann and J.C. Ramirez, "Three-dimensional phase-field simulations of the

- effect of convection on free dendritic growth", *J. Cryst. Growth*, 280 (2005) 320-334.
- [106] C.C. Chen, Y.L. Tsai and C.W. Lan, "Adaptive phase field simulation of dendritic crystal growth in a forced flow: 2D vs 3D morphologies", *Int. J. Heat Mass Transfer*, 52 (2009) 1158-1166.
- [107] C.C. Chen and C.W. Lan, "Efficient adaptive three-dimensional phase field simulation of free dendritic growth under natural convection", *J. Cryst. Growth*, 312 (2010) 1437-1442.
- [108] M. Do-Quang and G. Amberg, "Simulation of free dendritic crystal growth in a gravity environment", *J. Comput. Phys.*, 227 (2008) 1772-1789.
- [109] R. Rojas, T. Takaki and M. Ohno, "A phase-field-lattice Boltzmann method for modeling motion and growth of a dendrite for binary alloy solidification in the presence of melt convection", *J. Comput. Phys.*, 298 (2015) 29-40.
- [110] X.B. Qi, Y. Chen, X.H. Kang, D.Z. Li and T.Z. Gong, "Modeling of coupled motion and growth interaction of equiaxed dendritic crystals in a binary alloy during solidification", *Sci. Rep.*, 7 (2017) 45770.
- [111] T. Takaki, R. Sato, R. Rojas, M. Ohno and Y. Shibuta, "Phase-field lattice Boltzmann simulations of multiple dendrite growth with motion, collision, and coalescence and subsequent grain growth", *Comput. Mater. Sci.*, 147 (2018) 124-131.
- [112] N. Provatas, N. Goldenfeld and J. Dantzig, "Adaptive Mesh Refinement Computation of Solidification Microstructures Using Dynamic Data Structures", *J. Comput. Phys.*, 148 (1999) 265-290.
- [113] Y. Chen, X.B. Qi, D.Z. Li, X.H. Kang and N.M. Xiao, "A quantitative phase-field model combining with front-tracking method for polycrystalline solidification of alloys", *Comput. Mater. Sci.*, 104 (2015) 155-161.
- [114] Z. Guo and S.M. Xiong, "On solving the 3-D phase field equations by employing a parallel-adaptive mesh refinement (Para-AMR) algorithm", *Comput. Phys. Commun.*, 190 (2015) 89-97.
- [115] Z. Guo and S.M. Xiong, "Study of dendritic growth and coarsening using a 3-D phase field model: Implementation of the Para-AMR algorithm", *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, 84 (2015) 012067.
- [116] H. Neumann-Heyme, K. Eckert and C. Beckermann, "General evolution equation for the specific interface area of dendrites during alloy solidification", *Acta Mater.*, 140 (2017) 87-96.
- [117] A. Zhang, J. Du, Z. Guo, Q. Wang and S. Xiong, "A Phase-Field Lattice-Boltzmann Study on Dendritic Growth of Al-Cu Alloy Under Convection", *Metall. Mater. Trans. B*, 49 (2018) 3603-3615.
- [118] X. Zhang, J. Kang, Z. Guo, S. Xiong and Q. Han, "Development of a Para-AMR algorithm

- for simulating dendrite growth under convection using a phase-field–lattice Boltzmann method", *Comput. Phys. Commun.*, 223 (2018) 18-27.
- [119] A. Zhang, S. Meng, Z. Guo, J. Du, Q. Wang and S. Xiong, "Dendritic Growth Under Natural and Forced Convection in Al-Cu Alloys: From Equiaxed to Columnar Dendrites and from 2D to 3D Phase-Field Simulations", *Metall. Mater. Trans. B*, 50 (2019) 1514-1526.
- [120] T. Shimokawabe, T. Aoki, T. Takaki, T. Endo, A. Yamanaka, N. Maruyama, A. Nukada and S. Matsuoka, "Peta-scale phase-field simulation for dendritic solidification on the TSUBAME 2.0 supercomputer", In *Proceedings of International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis* (2011) 1-11.
- [121] T. Takaki, T. Shimokawabe, M. Ohno, A. Yamanaka and T. Aoki, "Unexpected selection of growing dendrites by very-large-scale phase-field simulation", *J. Cryst. Growth*, 382 (2013) 21-25.
- [122] T. Takaki, "Phase-field Modeling and Simulations of Dendrite Growth", *ISIJ Int.*, 54 (2014) 437-444.
- [123] M. Ohno, T. Takaki and Y. Shibuta, "Numerical testing of quantitative phase-field models with different polynomials for isothermal solidification in binary alloys", *J. Comput. Phys.*, 335 (2017) 621-636.
- [124] C. Yang, Q. Xu and B. Liu, "GPU-accelerated three-dimensional phase-field simulation of dendrite growth in a nickel-based superalloy", *Comput. Mater. Sci.*, 136 (2017) 133-143.
- [125] Y. Song, D. Tournet, F.L. Mota, J. Pereda, B. Billia, N. Bergeon, R. Trivedi and A. Karma, "Thermal-field effects on interface dynamics and microstructure selection during alloy directional solidification", *Acta Mater.*, 150 (2018) 139-152.
- [126] T. Takaki, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Aoki and C.-A. Gandin, "Competitive grain growth during directional solidification of a polycrystalline binary alloy: Three-dimensional large-scale phase-field study", *Materialia*, 1 (2018) 104-113.
- [127] E. Dorari, M. Eshraghi and S.D. Felicelli, "A multiple-grid-time-step lattice Boltzmann method for transport phenomena with dissimilar time scales: Application in dendritic solidification", *Appl. Math. Model.*, 62 (2018) 580-594.
- [128] D. Walton and B. Chalmers, "The origin of the preferred orientation in the columnar zone of ingots", *T. Met. Soc. AIME*, 215 (1959) 447-457.
- [129] M. Rappaz and C.-A. Gandin, "Probabilistic modelling of microstructure formation in solidification processes", *Acta Metall. Mater.*, 41 (1993) 345-360.
- [130] C.-A. Gandin and M. Rappaz, "A coupled finite element-cellular automaton model for the prediction of dendritic grain structures in solidification processes", *Acta Metall. Mater.*, 42 (1994) 2233-2246.
- [131] H. Esaka, M. Tamura and K. Shinozuka, "Analysis of Yield Rate in Single Crystal Casting

- Process Using an Engineering Simulation Model", *Mater. Trans.*, 44 (2003) 829-835.
- [132] N. D'Souza, M.G. Ardakani, A. Wagner, B.A. Shollock and M. McLean, "Morphological aspects of competitive grain growth during directional solidification of a nickel-base superalloy, CMSX4", *J. Mater. Sci.*, 37 (2002) 481-487.
- [133] A. Wagner, B.A. Shollock and M. McLean, "Grain structure development in directional solidification of nickel-base superalloys", *Mater. Sci. Eng. A*, 374 (2004) 270-279.
- [134] Y.Z. Zhou, A. Volek and N.R. Green, "Mechanism of competitive grain growth in directional solidification of a nickel-base superalloy", *Acta Mater.*, 56 (2008) 2631-2637.
- [135] Y. Shibuta, M. Ohno and T. Takaki, "Solidification in a Supercomputer: From Crystal Nuclei to Dendrite Assemblages", *JOM*, 67 (2015) 1793-1804.
- [136] 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, "Mechanism of competitive growth during directional solidification of a nickel-base superalloy in a three-dimensional reference frame", *Acta Mater.*, 60 (2012) 3965-3975.
- [137] Z. Liu, M. Lin, D. Yu, X. Zhou, Y. Gu and H. Fu, "Dependence of Competitive Grain Growth on Secondary Dendrite Orientation During Directional Solidification of a Ni-based Superalloy", *Metall. Mater. Trans. A*, 44 (2013) 5113-5121.
- [138] C. Yang, L. Liu, X. Zhao, N. Wang, J. Zhang and H. Fu, "Competitive grain growth mechanism in three dimensions during directional solidification of a nickel-based superalloy", *J. Alloys Compd.*, 578 (2013) 577-584.
- [139] P. Carter, D.C. Cox, C.A. Gandin and R.C. Reed, "Process modelling of grain selection during the solidification of single crystal superalloy castings", *Mater. Sci. Eng. A*, 280 (2000) 233-246.
- [140] D. Pan, Q. Xu, B. Liu, J. Li, H. Yuan and H. Jin, "Modeling of grain selection during directional solidification of single crystal superalloy turbine blade castings", *JOM*, 62 (2010) 30-34.
- [141] H.J. Dai, N. D'Souza and H.B. Dong, "Grain Selection in Spiral Selectors During Investment Casting of Single-Crystal Turbine Blades: Part I. Experimental Investigation", *Metall. Mater. Trans. A*, 42 (2011) 3430-3438.
- [142] H. Jacobi and K. Schwerdtfeger, "Dendrite morphology of steady state unidirectionally solidified steel", *Metall. Trans. A*, 7 (1976) 811-820.
- [143] D.G. McCartney and J.D. Hunt, "Measurements of cell and primary dendrite arm spacings in directionally solidified aluminium alloys", *Acta Metall.*, 29 (1981) 1851-1863.
- [144] M. Rappaz and E. Blank, "Simulation of oriented dendritic microstructures using the concept of dendritic lattice", *J. Cryst. Growth*, 74 (1986) 67-76.
- [145] A. Schievenbusch, G. Zimmermann and M. Mathes, "Comparison of different analysis techniques to determine the cellular and dendritic spacing", *Mater. Sci. Eng. A*, 173 (1993)

85-88.

- [146] T. Suzuki and T. Sato, "Spatial Pattern Analysis of Primary Dendrite Arrays using Minimal Spanning Tree", *J. Jpn. Inst. Met.*, 61 (1997) 449-455.
- [147] L. Yu, G.L. Ding, J. Reye, S.N. Tewari and S.N. Ojha, "Cellular/dendritic array tip morphology during directional solidification of Pb-5.8 Wt Pct Sb alloy", *Metall. Mater. Trans. A*, 30 (1999) 2463-2472.
- [148] J. Hui, R. Tiwari, X. Wu, S.N. Tewari and R. Trivedi, "Primary dendrite distribution and disorder during directional solidification of Pb-Sb alloys", *Metall. Mater. Trans. A*, 33 (2002) 3499-3510.
- [149] S.N. Tewari, Y.H. Weng, G.L. Ding and R. Trivedi, "Cellular array morphology during directional solidification", *Metall. Mater. Trans. A*, 33 (2002) 1229-1243.
- [150] R.E. Napolitano and D.R. Black, "Array ordering in dendritic crystals and the influence on crystal perfection", *J. Mater. Sci.*, 39 (2004) 7009-7017.
- [151] L. Sturz, G. Zimmermann, S. Rex, M. Mathes and B. Kauerauf, "Analysis of diffusive cellular patterns in directional solidification of bulk samples", *Metall. Mater. Trans. A*, 35 (2004) 239-246.
- [152] N. Warnken and R.C. Reed, "On the Characterization of Directionally Solidified Dendritic Microstructures", *Metall. Mater. Trans. A*, 42 (2010) 1675-1683.
- [153] N. Bergeon, D. Tournet, L. Chen, J.M. Debierre, R. Guerin, A. Ramirez, B. Billia, A. Karma and R. Trivedi, "Spatiotemporal dynamics of oscillatory cellular patterns in three-dimensional directional solidification", *Phys. Rev. Lett.*, 110 (2013) 226102.
- [154] P. Peng, X. Li, Y. Su, D. Liu, J. Guo and H. Fu, "Primary dendrite distribution in directionally solidified Sn-36 at.% Ni peritectic alloy", *J. Mater. Res.*, 28 (2013) 740-746.
- [155] M.A. Tschopp, J.D. Miller, A.L. Oppedal and K.N. Solanki, "Characterizing the Local Primary Dendrite Arm Spacing in Directionally Solidified Dendritic Microstructures", *Metall. Mater. Trans. A*, 45 (2013) 426-437.
- [156] D. Tournet, J.M. Debierre, Y. Song, F.L. Mota, N. Bergeon, R. Guerin, R. Trivedi, B. Billia and A. Karma, "Oscillatory cellular patterns in three-dimensional directional solidification", *Phys. Rev. E*, 92 (2015) 042401.
- [157] M.A. Tschopp, J.D. Miller, A.L. Oppedal and K.N. Solanki, "Evaluating Local Primary Dendrite Arm Spacing Characterization Techniques Using Synthetic Directionally Solidified Dendritic Microstructures", *Metall. Mater. Trans. A*, 46 (2015) 4610-4628.
- [158] S. Ganesan, C.L. Chan and D.R. Poirier, "Permeability for flow parallel to primary dendrite arms", *Mater. Sci. Eng. A*, 151 (1992) 97-105.
- [159] C.L. Brundidge, D. van Drasek, B. Wang and T.M. Pollock, "Structure Refinement by a Liquid Metal Cooling Solidification Process for Single-Crystal Nickel-Base Superalloys",

- Metall. Mater. Trans. A*, 43 (2011) 965-976.
- [160] S.M. Allen and J.W. Cahn, "A microscopic theory for antiphase boundary motion and its application to antiphase domain coarsening", *Acta Metall.*, 27 (1979) 1085-1095.
- [161] B. Echebarria, A. Karma and S. Gurevich, "Onset of sidebranching in directional solidification", *Phys. Rev. E*, 81 (2010) 021608.
- [162] 日本金属学会 "改訂 4 版 金属データブック", 丸善出版 (2004).
- [163] M. Gündüz and E. Çadırlı, "Directional solidification of aluminium-copper alloys", *Mater. Sci. Eng. A*, 327 (2002) 167-185.
- [164] W. Kurz and D.J. Fisher, "Fundamentals of solidification", Trans Tech Publications, (1989).
- [165] M. Gündüz and J.D. Hunt, "The measurement of solid-liquid surface energies in the Al-Cu, Al-Si and Pb-Sn systems", *Acta Metall.*, 33 (1985) 1651-1672.
- [166] C. Dussert, G. Rasigni, M. Rasigni, J. Palmari and A. Llebaria, "Minimal spanning tree: A new approach for studying order and disorder", *Phys. Rev. B*, 34 (1986) 3528-3531.
- [167] B. Billia, H. Jamgotchian and H. Nguyen-Thi, "Statistical analysis of the disorder of two-dimensional cellular arrays in directional solidification", *Metall. Trans. A*, 22 (1991) 3041-3050.
- [168] N. Noël, H. Jamgotchian and B. Billia, "In situ and real-time observation of the formation and dynamics of a cellular interface in a succinonitrile-0.5 wt% acetone alloy directionally solidified in a cylinder", *J. Cryst. Growth*, 181 (1997) 117-132.
- [169] L.S. Tsimring, "Penta-hepta defect motion in hexagonal patterns", *Phys. Rev. Lett.*, 74 (1995) 4201-4204.
- [170] T. Tam, D. Ohata and M. Wu, "Dynamics of a penta-hepta defect in a hexagonal pattern", *Phys. Rev. E*, 61 (2000) R9-R12.
- [171] M.A. Tschopp, M.A. Groeber, R. Fahringer, J.P. Simmons, A.H. Rosenberger and C. Woodward, "Symmetry-based automated extraction of microstructural features: Application to dendritic cores in single-crystal Ni-based superalloys", *Scripta Mater.*, 62 (2010) 357-360.
- [172] M.A. Tschopp, M.A. Groeber, J.P. Simmons, A.H. Rosenberger and C. Woodward, "Automated extraction of symmetric microstructure features in serial sectioning images", *Mater. Charact.*, 61 (2010) 1406-1417.
- [173] J.D. Hunt, "Solidification and casting of metals", Metals Society (1979).
- [174] W. Kurz and D.J. Fisher, "Dendrite growth at the limit of stability: tip radius and spacing", *Acta Metall.*, 29 (1981) 11-20.
- [175] A.N. Kolmogorov, "Geometric selection of crystals", *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, 65 (1949) 681-684.
- [176] T.Y. Olson, A.A. Chernov, B.A. Drabek, J.H. Satcher and T.Y.-J. Han, "Experimental Validation of the Geometrical Selection Model for Hydrothermally Grown Zinc Oxide

- Nanowire Arrays", *Chem. Mater.*, 25 (2012) 1363-1371.
- [177] D. Tournet, Y. Song, A.J. Clarke and A. Karma, "Grain growth competition during thin-sample directional solidification of dendritic microstructures: A phase-field study", *Acta Mater.*, 122 (2017) 220-235.
- [178] N.H. Gray, "Geometric selection in two-dimensional crystal aggregates", *J. Int. Ass. Math. Geol.*, 16 (1984) 91-100.
- [179] S. Chen and G.D. Doolen, "Lattice Boltzmann Method for Fluid Flows", *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 30 (1998) 329-364.
- [180] G.-S. Jiang and C.-W. Shu, "Efficient Implementation of Weighted ENO Schemes", *J. Comput. Phys.*, 126 (1996) 202-228.
- [181] G.-S. Jiang and D. Peng, "Weighted ENO Schemes for Hamilton--Jacobi Equations", *SIAM J. Sci. Comput.*, 21 (2000) 2126-2143.
- [182] P.L. Bhatnagar, E.P. Gross and M. Krook, "A Model for Collision Processes in Gases. I. Small Amplitude Processes in Charged and Neutral One-Component Systems", *Phys. Rev.*, 94 (1954) 511-525.
- [183] Y.H. Qian, D.D. Humières and P. Lallemand, "Lattice BGK Models for Navier-Stokes Equation", *Europhys. Lett.*, 17 (1992) 479.
- [184] N.Y. Konstantinova, P.S. Popel' and D. Yagodin, "The kinematic viscosity of liquid copper-aluminum alloys", *High temp.*, 47 (2009) 336-341.
- [185] P.-H. Chiu and Y.-T. Lin, "A conservative phase field method for solving incompressible two-phase flows", *J. Comput. Phys.*, 230 (2011) 185-204.
- [186] D.A. Kessler, J. Koplik and H. Levine, "Pattern selection in fingered growth phenomena", *Adv. Phys.*, 37 (1988) 255-339.
- [187] P. Rousset, M. Rappaz and B. Hannart, "Modeling of inverse segregation and porosity formation in directionally solidified aluminum alloys", *Metall. Mater. Trans. A*, 26 (1995) 2349-2358.
- [188] S.D. Felicelli, J.C. Heinrich and D.R. Poirier, "Simulation of freckles during vertical solidification of binary alloys", *Metall. Mater. Trans. B*, 22 (1991) 847-859.
- [189] M.C. Schneider, J.P. Gu, C. Beckermann, W.J. Boettinger and U.R. Kattner, "Modeling of micro- and macrosegregation and freckle formation in single-crystal nickel-base superalloy directional solidification", *Metall. Mater. Trans. A*, 28 (1997) 1517-1531.
- [190] C. Beckermann, J.P. Gu and W.J. Boettinger, "Development of a freckle predictor via rayleigh number method for single-crystal nickel-base superalloy castings", *Metall. Mater. Trans. A*, 31 (2000) 2545-2557.
- [191] M. Ohno and H. Sato, "Macrosegregation simulation model based on Lattice-Boltzmann method with high computational efficiency", *Int. J. Heat Mass Transfer*, 127 (2018) 561-570.

- [192] D.A. Edwards, M. Shapiro, P. Bar-Yoseph and M. Shapira, "The influence of Reynolds number upon the apparent permeability of spatially periodic arrays of cylinders", *Phys. Fluids A*, 2 (1990) 45-55.
- [193] A.S. Sangani and A. Acrivos, "Slow flow past periodic arrays of cylinders with application to heat transfer", *Int. J. Multiphase Flow*, 8 (1982) 193-206.
- [194] T. Takaki, R. Rojas, S. Sakane, M. Ohno, Y. Shibuta, T. Shimokawabe and T. Aoki, "Phase-field-lattice Boltzmann studies for dendritic growth with natural convection", *J. Cryst. Growth*, 474 (2017) 146-153.
- [195] P. Tin and H.C. de Groh III, "Surface Tension and Viscosity of Succinonitrile–Acetone Alloys Using Surface Light Scattering Spectrometer", *Int. J. Thermophys.*, 25 (2004) 1143-1153.
- [196] S.C. Huang and M.E. Glicksman, "Overview 12: Fundamentals of dendritic solidification—I. Steady-state tip growth", *Acta Metall.*, 29 (1981) 701-715.
- [197] J. Lipton, M.E. Glicksman and W. Kurz, "Equiaxed dendrite growth in alloys at small supercooling", *Metall. Mater. Trans. A*, 18 (1987) 341-345.
- [198] D.L. Ceynar and C. Beckermann, "Measurement of the density of succinonitrile–acetone alloys", *J. Cryst. Growth*, 222 (2001) 380-391.
- [199] Y. Shibuta, M. Ohno and T. Takaki, "Advent of Cross-Scale Modeling: High-Performance Computing of Solidification and Grain Growth", *Adv. Theory Simul.*, 1 (2018) 1800065.
- [200] S.G. Kim, D.I. Kim, W.T. Kim and Y.B. Park, "Computer simulations of two-dimensional and three-dimensional ideal grain growth", *Phys. Rev. E*, 74 (2006) 061605.
- [201] T. Takaki, T. Hirouchi, Y. Hisakuni, A. Yamanaka and Y. Tomita, "Multi-Phase-Field Model to Simulate Microstructure Evolutions during Dynamic Recrystallization", *Materials Transactions*, 49 (2008) 2559-2565.
- [202] T. Takaki, R. Rojas, M. Ohno, T. Shimokawabe and T. Aoki, "GPU phase-field lattice Boltzmann simulations of growth and motion of a binary alloy dendrite", *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, 84 (2015) 012066.
- [203] T. Seta, R. Rojas, K. Hayashi and A. Tomiyama, "Implicit-correction-based immersed boundary-lattice Boltzmann method with two relaxation times", *Phys. Rev. E*, 89 (2014) 023307.
- [204] S.C. Huang and M.E. Glicksman, "Overview 12: Fundamentals of dendritic solidification—II development of sidebranch structure", *Acta Metallurgica*, 29 (1981) 717-734.
- [205] M.B. Koss, J.C. LaCombe, L.A. Tennenhouse, M.E. Glicksman and E.A. Winsa, "Dendritic Growth tip velocities and radii of curvature in microgravity", *Metallurgical and Materials Transactions A*, 30 (1999) 3177-3190.
- [206] J. Lipton, M.E. Glicksman and W. Kurz, "Equiaxed dendrite growth in alloys at small

- supercooling", *Metall. Mater. Trans. A*, 18 (1987) 341-345.
- [207] J. Kageyama, Y. Sasajima and M. Ichimura, "Phase Field Simulation on Directional Solidification of Succinonitrile (SCN)-Acetone Organic Model Alloy", *Mater. Trans.*, 46 (2005) 2003-2010.
- [208] A. Wachs, "A DEM-DLM/FD method for direct numerical simulation of particulate flows: Sedimentation of polygonal isometric particles in a Newtonian fluid with collisions", *Comput. & Fluids*, 38 (2009) 1608-1628.
- [209] H.G. Lee and J. Kim, "An efficient numerical method for simulating multiphase flows using a diffuse interface model", *Physica A*, 423 (2015) 33-50.

関連学術論文

第 2 章

Shinji Sakane, Tomohiro Takaki, Munekazu Ohno, Takashi Shimokawabe and Takayuki Aoki, “GPU-accelerated 3D phase-field simulations of dendrite competitive growth during directional solidification of binary alloy”, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 84 (2015) 012063.

Tomohiro Takaki, Shinji Sakane, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Takashi Shimokawabe and Takayuki Aoki, “Primary arm array during directional solidification of a single-crystal binary alloy: Large-scale phase-field study”, *Acta Materialia*, 118 (2016) 230–243.

Tomohiro Takaki, Shinji Sakane, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Takashi Shimokawabe and Takayuki Aoki, “Large-scale Phase-field Studies of Three-dimensional Dendrite Competitive Growth at the Converging Grain Boundary during Directional Solidification of a Bicrystal Binary Alloy”, *ISIJ International*, 56 (2016) 1427–1435.

Tomohiro Takaki, Shinji Sakane, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Takayuki Aoki and Charles-André Gandin, “Competitive grain growth during directional solidification of a polycrystalline binary alloy: Three-dimensional large-scale phase-field study”, *Materialia*, 1 (2018) 104–113.

第 3 章

Shinji Sakane, Tomohiro Takaki, Roberto Rojas, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Takashi Shimokawabe and Takayuki Aoki, “Multi-GPUs parallel computation of dendrite growth in forced convection using the phase-field-lattice Boltzmann model”, *Journal of Crystal Growth*, 474 (2017) 154–159.

Shinji Sakane, Tomohiro Takaki, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Takashi Shimokawabe and Takayuki Aoki, “Three-dimensional morphologies of inclined equiaxed dendrites growing under forced convection by phase-field-lattice Boltzmann method”, *Journal of Crystal Growth*, 483 (2018) 147–155.

Tomohiro Takaki, Shinji Sakane, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta and Takayuki Aoki, “Large-scale phase-field lattice Boltzmann study on the effects of natural convection on dendrite morphology formed during directional solidification of a binary alloy”, *Computational Materials Science*, 171 (2020) 109209.

Tomohiro Takaki, Shinji Sakane, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta and Takayuki Aoki, “Permeability prediction for flow normal to columnar solidification structures by large-scale simulations of phase-field and lattice Boltzmann methods”, *Acta Materialia*, 164 (2019) 237–249.

第 4 章

Shinji Sakane, Tomohiro Takaki, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta and Takayuki Aoki, “Acceleration of phase-field lattice Boltzmann simulation of dendrite growth with thermosolutal convection by the multi-GPUs parallel computation with multiple mesh and time step method”, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 27 (2019) 054004.

第 5 章

Shinji Sakane, Tomohiro Takaki, Munekazu Ohno and Yasushi Shibuta, “Simulation method based on phase-field lattice Boltzmann model for long-distance sedimentation of single equiaxed dendrite”, *Computational Materials Science*, 164 (2019) 39–45.

Shinji Sakane, Tomohiro Takaki, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta and Takayuki Aoki, "Two-dimensional large-scale phase-field lattice Boltzmann simulation of polycrystalline equiaxed solidification with motion of a massive number of dendrites", *Computational Materials Science*, 178 (2020) 109639.

謝辞

本研究は、著者が京都工芸繊維大学大学院工芸科学研究科設計工学専攻に在籍中に、京都工芸繊維大学機械工学系 高木知弘教授の御指導の下で行ったものです。高木知弘教授には、学部生の頃から現在に至るまで、素晴らしい研究環境や数多くの研究発表の機会を御提供いただき、終始熱心な御指導、御鞭撻を賜りました。ここに深謝の意を表します。

北海道大学工学研究院材料科学部門マテリアル設計分野 大野宗一教授ならびに東京大学大学院工学系研究科マテリアル工学専攻 澁田靖准教授には、研究を進めるにあたってたびたび熱心な御議論と有益な御助言をいただきました。深く感謝申し上げます。

東京工業大学学術国際情報センター 青木尊之教授ならびに東京大学情報基盤センター 下川辺隆史准教授には、TSUBAME の利用と GPU 計算の実装にあたって多大なる御指導と御助力をいただきました。心より感謝申し上げます。

また、当時、京都工芸繊維大学機械工学系 数値材料デザイン研究室に研究員として所属されていた Escuela Politécnica Nacional, Rojas Molina Roberto Carlos 准教授には、凝固モデルに流体計算や固体の運動を導入するにあたり多大なる御助力をいただきました。深く御礼申し上げます。

本研究では、2018 年から 2020 年の間、日本学術振興会特別研究員(DC2)に対する科学研究費補助金(特別研究員奨励費)の援助のもとに行われました。ここに記して謝意を表します。

そして、6 年間の研究室生活の中で、同期として研究のみならず様々な面で有益な御議論、御助力をいただきました京都工芸繊維大学大学院工芸科学研究科設計工学専攻 三好英輔氏に深く感謝申し上げます。また、これまで共に研究生活を送った研究室諸氏にも御支援と御助力をいただき、充実した研究生活を送ることが出来ました。心から感謝の意を表します。

最後に、9 年間もの長きに渡る大学生活に対して、御理解いただき援助してくださった家族に心より感謝申し上げます。

2019 年 12 月 坂根 慎治