

jh130014-NA09

大規模フェーズフィールド計算による高精度凝固組織予測システムの構築

高木 知弘 (京都工芸繊維大学)

概要 本研究では、合金凝固時に形成される複雑な dendrite 形態を表現可能なフェーズフィールド法を用い、東工大の GPU スパコン TSUBAME2.5 による超大規模フェーズフィールド計算を可能とし、合金凝固組織の高精度予測および形成メカニズムの解明を行うことを目的としている。今年度は、二元合金凝固に対する定量的フェーズフィールドモデルを一方向凝固問題に拡張し、引き抜き速度に対応して領域を移動させる **moving frame algorithm** を適用した GPU コードを開発した。また、TSUBAME2.5 に並列 GPU コーディングを行い、3 次元計算を可能とした。本手法を用いることで、単結晶体と二結晶体に対する複数 dendrite の競合成長シミュレーションを行った。その結果、最近実験的に確認された新たな淘汰現象を再現し、そのメカニズムを解明した。また、dendrite の配列現象解明の研究に着手した。

1. 研究の目的と意義

軽量かつ高強度な新材料の開発のためには、レアアースなどの希少高価な材料を用いるかどうかに関わらず、ミクロンオーダーの材料組織を高精度にコントロールすることが極めて重要である。このためには試行錯誤的に行われる実験的手法に加え、多種多様なプロセス因子を体系的に評価可能な数値シミュレーション技術の確立が必要となる。材料組織は、鋳造・圧延・熱処理・塑性加工といった様々な加工プロセスでその形態を変化させるが、一番初めに材料組織が形成される凝固過程における凝固組織を高精度にコントロールしておけば、引き続き行われる加工プロセスにおいて形成される組織コントロールが容易もしくは不要となる。凝固過程において形成される典型的な材料組織は dendrite (樹枝状結晶) である。Dendrite は極めて複雑な形態を有しており、自由境界値問題をそのまま解く従来の方法では表現が困難であり、界面位置を追従する必用のないフェーズフィールド法が最も強力な数値モデルとして定着しつつある。

本研究では、新材料開発を支援する大規模フェーズフィールド計算に基づく高精度凝固組織予測システムの構築を目的とする。これは 2011 年にゴードンベル賞を受賞した研究の継続研究であり、今年度は界面幅 (格子サイズ) に依存しない定量的評価を可能とする定量的フェーズフィールド法

を新たに導入し実用的なシステムの構築を目指す。また、構築するシステムを用いた系統的な大規模シミュレーションを行うことで、複数 dendrite 間の競合成長メカニズムを解明し、新材料開発のために必要となる基礎データの蓄積を行う。

日本が経済大国を維持するためには、ものづくりの根幹となる材料開発を先導し続ける必要がある。材料開発には新しい元素を既存材料に添加することに加え、材料組織を適切にコントロールするプロセスの最適設計が不可欠である。しかしながら、材料加工プロセスにおけるコントロール因子は非常に多く、それらを従来の実験による試行錯誤的な評価のみで行うには限界がある。また、実験のみによる材料組織形成メカニズムの本質的解明は困難である。さらに、最近の実験技術の向上により、Spring-8 等の大規模放射光施設を用いた金属材料の凝固過程その場観察技術が確立しつつあるが、試験対象は 0.1 mm 程度の薄膜、つまり 2 次元現象に限定されており、実際の材料内部で生じる 3 次元空間における組織形成予測は現在のところ不可能である。そのため、数値シミュレーションによる材料組織設計法およびプロセス設計法の確立は、新材料開発のために極めて意義深い。しかしながら、材料組織計算はコストが極めて大きくなり、複数 dendrite から構成される凝固組織の完全 3 次元構造を表現した計算は、世界的にみても殆ど報告されていない。そのため、大規

模凝固シミュレーションで世界をリードし、最先端の研究成果を出し続けることは大変重要である。

2. 当拠点公募型共同研究として実施した意義

(1) 共同研究を実施した拠点名および役割分担

拠点名：東京工業大学

役割分担：

高木 知弘（京都工芸繊維大学・大学院工芸科学研究科）

研究全体の統括，フェーズフィールドモデル導入と基本評価および計算データ評価

青木 尊之（東京工業大学・学術国際情報センター）
大規模 GPU 計算の統括・Kepler コアの GPU に対するチューニング

大野 宗一（北海道大学・大学院工学研究院）
定量的フェーズフィールドモデルの構築とプログラムへの実装

下川辺 隆史（東京工業大学・学術国際情報センター）
並列 GPU プログラムの開発および TSUBAME への実装と計算のサポート

堀井 麻有（京都工芸繊維大学・工芸科学研究科）
計算の実行と結果のデータ処理

(2) 共同研究分野

超大規模数値計算系応用分野

(3) 当公募型共同研究ならではの事項など

本研究は，フェーズフィールド法と材料工学の専門家と超大規模計算の専門家のコラボレーションによって進められており，本共同研究ならではの研究体制である。また，極めて効果的な連携作業を進めており，着実に成果を出すことができている。

まず，大野（北大）が定量的 phase-field モデルを構築し，その基本プログラムを作成した。次に，高木（京工繊大）が GPU にコーディングを行い，青木・下川辺（東工大）が TSUBAME 用にコードを並列 GPU 化およびチューニングした。そのコードを用いることで，高木・堀井（京工繊大）が計算を行い，データの整理と結果の考察を行った。このように，作業分担は極めて明確であり，本共同研究ならではの異分野コラボレーションが効果的に遂行されている。

3. 研究成果の詳細と当初計画の達成状況

(1) 研究成果の詳細について

3-1-1 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

2 元合金凝固の定量的フェーズフィールドモデル(M. Ohno, K. Matsuura, PRE, 79, 2009, 031603)を一方向凝固問題に拡張した。本モデルでは，フェーズフィールド ϕ ，濃度 c ，温度 T の三つの変数を用いる。フェーズフィールド変数 ϕ は，液相内で $\phi = -1$ ，固相内で $\phi = +1$ と定義する。溶質濃度 c は $u = (c - c_l^e)/(c_l^e - c_s^e)$ で定義される無次元過飽和度によって表す。ここで， c_l^e と c_s^e は温度 T における液相線と固相線上の平衡濃度であり，分配係数 k を用いて $c_s^e = k c_l^e$ の関係がある。温度 T は温度勾配を一定とする近似を用い， z 方向の温度分布を $T(z) = T_0 + G(z - V_p t)$ によって表す。ここで， T_0 は $z = 0$ の温度， G は温度勾配， V_p は引張速度， t は時間である。フェーズフィールド ϕ の時間発展方程式は次式によって表される。

$$a_s(\theta)^2 [1 - (1-k)u] \frac{\partial \phi}{\partial t} = \nabla \cdot (a_s(\nabla \phi)^2 \nabla \phi) + \frac{\partial}{\partial x} \left[a_s(\nabla \phi) \frac{\partial a_s(\nabla \phi)}{\partial \phi_x} (\nabla \phi)^2 \right] + \frac{\partial}{\partial y} \left[a_s(\nabla \phi) \frac{\partial a_s(\nabla \phi)}{\partial \phi_y} (\nabla \phi)^2 \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[a_s(\nabla \phi) \frac{\partial a_s(\nabla \phi)}{\partial \phi_z} (\nabla \phi)^2 \right] - \frac{df(\phi)}{d\phi} - \lambda^* \frac{dg(\phi)}{d\phi} (u + u')$$

(1)

ここで， $df(\phi)/d\phi = -\phi + \phi^3$ ， $dg(\phi)/d\phi = (1-\phi^2)^2$ ， $\lambda^* = a_1 W/d_0$ ， $a_1 = 0.8839$ ， W は界面幅， d_0 はキャピラリ

一長さである．また， a_s は異方性関数であり，

$$a_s(\nabla\phi) = (1 - 3\zeta) \left\{ 1 + \frac{4\zeta}{1 - 3\zeta} \frac{\left(\frac{\partial\phi}{\partial x}\right)^4 + \left(\frac{\partial\phi}{\partial y}\right)^4 + \left(\frac{\partial\phi}{\partial z}\right)^4}{|\nabla\phi|^4} \right\} \quad (2)$$

を用いる． ζ は異方性強度である．ここで，異なるデンドライトの優先成長方向を表現するため，次式で表される座標変換を ϕ の勾配に対して行う．

$$\begin{pmatrix} \frac{\partial\phi}{\partial \tilde{x}} \\ \frac{\partial\phi}{\partial \tilde{y}} \\ \frac{\partial\phi}{\partial \tilde{z}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\partial x}{\partial \tilde{x}} & \frac{\partial y}{\partial \tilde{x}} & \frac{\partial z}{\partial \tilde{x}} \\ \frac{\partial x}{\partial \tilde{y}} & \frac{\partial y}{\partial \tilde{y}} & \frac{\partial z}{\partial \tilde{y}} \\ \frac{\partial x}{\partial \tilde{z}} & \frac{\partial y}{\partial \tilde{z}} & \frac{\partial z}{\partial \tilde{z}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{\partial\phi}{\partial x} \\ \frac{\partial\phi}{\partial y} \\ \frac{\partial\phi}{\partial z} \end{pmatrix}$$

$$= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos\theta_x & \sin\theta_x \\ 0 & -\sin\theta_x & \cos\theta_x \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\theta_y & 0 & \sin\theta_y \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin\theta_y & 0 & \cos\theta_y \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\theta_z & \sin\theta_z & 0 \\ -\sin\theta_z & \cos\theta_z & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{\partial\phi}{\partial x} \\ \frac{\partial\phi}{\partial y} \\ \frac{\partial\phi}{\partial z} \end{pmatrix} \quad (3)$$

また，式(1)の u' は， z 軸方向の温度変化によって付加される無次元過飽和度であり，

$$u' = \frac{z - V_p t}{l_T} \quad (4)$$

によって表される．ここで， l_T は $l_T = |m|(1-k)c_l^0/G$ によって定義される長さ， m は液相線勾配である．

無次元過飽和度 u の時間発展方程式は次式により表される．

$$\frac{1}{2}[1+k-(1-k)\phi] \frac{\partial u}{\partial t} = a_2 \lambda^* \nabla [q(\phi) \nabla u - j_{AT}] + \frac{1}{2}[1+(1-k)u] \frac{\partial \phi}{\partial t} - a_2 \lambda^* \nabla \cdot J \quad (5)$$

ここで， j_{AT} は

$$j_{AT} = -a(\phi)W[1+(1-k)u] \frac{\partial \phi}{\partial t} \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \quad (6)$$

で表される anti-trapping current であり，この項の導入により界面幅に依存しない結果を出す定量性が保障される．また， J は濃度場を揺らがすために加えられる流束である．

3-1-2 一方向凝固問題のための moving frame algorithm

本一方向凝固シミュレーションにおいては，温度分布を $T(z) = T_0 + G(z - V_p t)$ によって近似する．しかしながら，長い時間の計算を行う場合，非常に大きな計算領域を必要とする．このため，計算領域を引き抜き速度に対応させて移動させる moving frame algorithm を採用する．本シミュレーションでは，速度 V_p で格子サイズ Δz 移動する時間 $\Delta z/V_p$ の間は，温度を $T(z) = T_0 + G(z - V_p t)$ に従って変化させ，時間 $\Delta z/V_p$ 毎に z 方向の格子点の値を一つ下の格子点に移動させる方法を適用する．

3-1-3 二結晶競合成長シミュレーションによる新しい淘汰現象の解明

図 1 に示す計算領域を用いた Al-Cu 二元合金の二結晶競合成長シミュレーションを行う． $1840 \times n_y \times 1536$ の差分格子点を用い，格子サイズは $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 0.75 \mu\text{m}$ とする．初期に全領域を 3 wt% の液相で満たし，領域下端面に図 1 のように核を配置する．ここで，左から四つは優先成長方向が熱流方向と等しい FO (favorably oriented) デンドライト，右の四つは優先成長方向が熱流方向から 15° 傾いた UO (unfavorably oriented) デンドライトとする．境界条件は，全方向に対して零ノイマン条件を設定する．

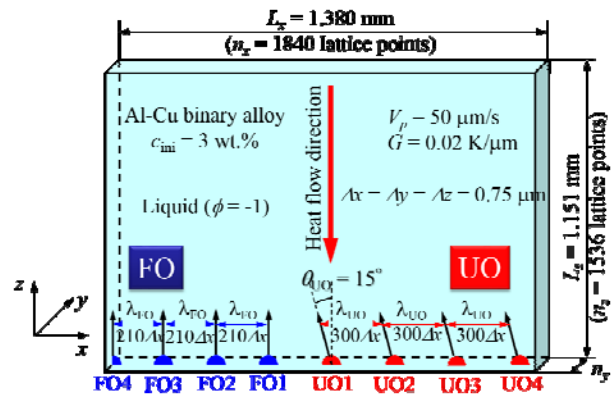
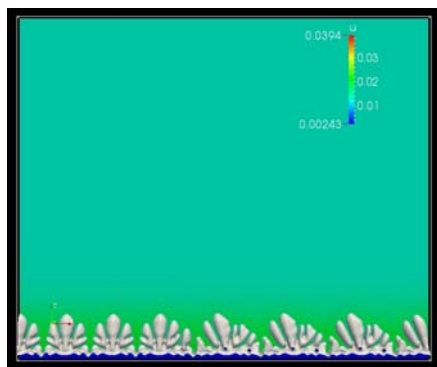


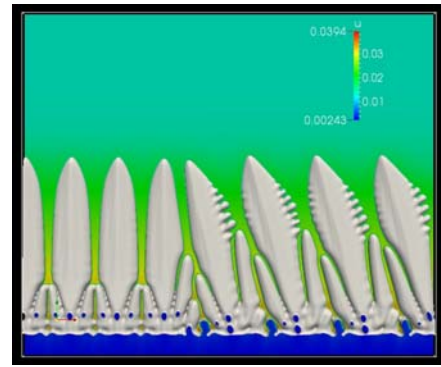
Fig. 1 Computational conditions for bi-crystal competitive growth simulation.

図 2 は、 $n_y = 80$ の場合の形態変化を示す。白い領域が固体 ($\phi = 0$ の等高面)、色は奥行き方向中央における液相の濃度分布を示す。計算を開始すると、領域下端部に置かれた核から成長がはじまり、図(a)のように半球の核は dendrite 形態へと変化する。図(b)の 500000 steps までは温度を $T(z) = T_0 + G(z - V_p t)$ に従って変化させ、それ以降は領域を引き抜き速度に対応させて移動させる。図(b)と図(c)では、図 1 の F01 dendrite に向かって傾いた U0 dendrite が成長し、U0 dendrite が F01 dendrite に成長を止められている。図(d)は U0 dendrite が F01 dendrite を淘汰する直前の状態である。この U0 dendrite は U040、つまり 40 本目の U0 dendrite である。図(e)は 38000000 step 時の結果であり、この時点で U0 dendrite が全ての F0 dendrite を淘汰していることがわかる。

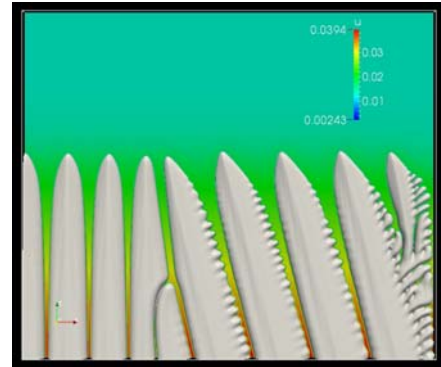
一般に、異なる優先成長方向を有する dendrite の淘汰現象においては、優先成長方向と熱流方向の角度が小さい dendrite が傾きの大きい dendrite を淘汰するといわれているが、本結果のように傾きの大きな dendrite が小さい dendrite を淘汰する現象が実験的に確認されており、本 3 次元シミュレーションにおいてその現象が再現され、これによって詳細なメカニズムが解明された。また、 n_y を変えたシミュレーションを行っており、領域幅の影響が淘汰現象に及ぼす影響を明らかにした。(詳細は論文投稿前であり省略する)



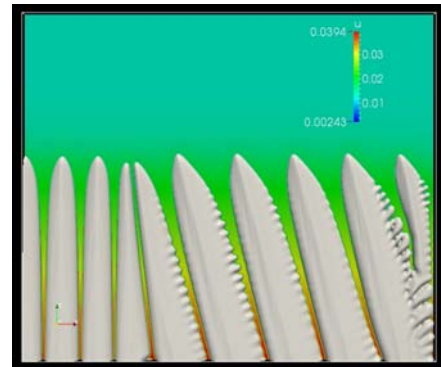
(a) 100000 steps



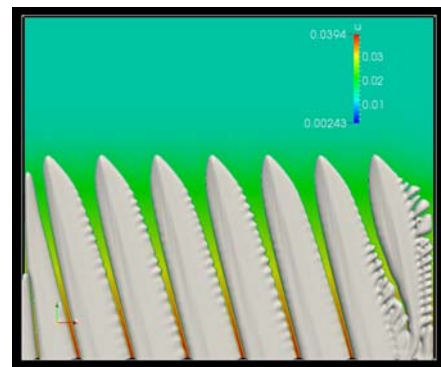
(b) 500000 steps



(c) 10000000 steps



(d) 22900000 steps



(e) 38000000 steps

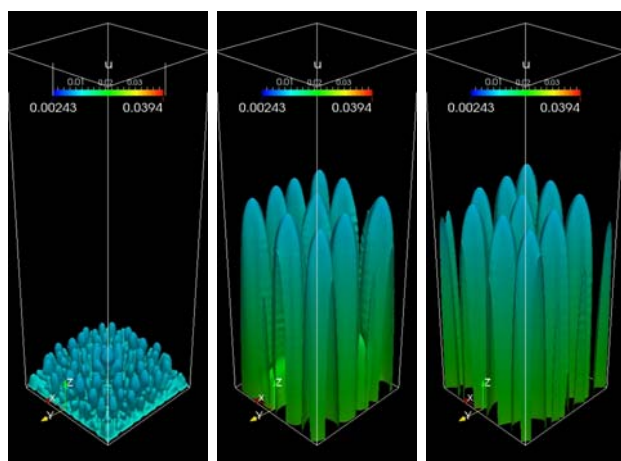
Fig. 2 Dendrite morphological changes during directional solidification of bi-crystal. ($n_y = 80$)

3-1-4 単結晶競合成長シミュレーションによるデンドライト配列挙動評価

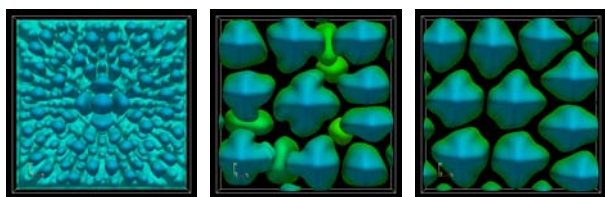
図 3 と図 4 は、単結晶材の一方向凝固シミュレーションの結果である。512×512×1536 の格子を用い、x 方向と y 方向の境界を周期境界としている。初期において、領域下端面中央に一つの半球形核を配置し、その他の条件は図 1 と同じである。

図 3 と図 4 より、計算初期に固体が下端面を覆い、そこから複数の突起が上方向へ向かって成長していることがわかる。しばらくは競合成長をしますが、ある一定の時間が経過するとデンドライト本数は一定になり、その配置を変えつつある定位置で定常成長を続けた。

この計算を複数行っており、現在、デンドライトの配列メカニズムについて詳細な検討を行っているところである。



(a) 100000 steps (b) 1000000 steps (c) 17000000 steps
Fig. 3 Dendrite morphological changes during directional solidification of single crystal.
(side view)



(a) 100000 steps (b) 1000000 steps (c) 17000000 steps
Fig. 4 Dendrite morphological changes during directional solidification of single crystal.
(top view)

(2) 当初計画の達成状況について

前節に示したように、3-1-1~4の研究を行った。ここで、3-1-1 と 3-1-2 のモデルの構築および GPU コーディングは計画通り達成できた。しかしながら、GPU コーディングと TSUBAME 用並列 GPU コーディング、およびバグ取り等に時間がかかり、並列化は 1 次元並列にとどまった。このため、予定していた超大規模計算に着手することはできなかった。一方で、最近凝固分野で新しく発見された新しい淘汰現象に着目し、この現象を解明する初めての 3 次元シミュレーションを行うことに成功した。3-1-3 がこの成果であり、現在論文を執筆中である。更に、3-1-4 で示した単結晶デンドライトの配列挙動も凝固分野では大変興味深い現象であり、本大規模計算によりその研究をスタートすることができた。このような 3 次元計算は凝固分野では世界的にも初めての試みであり、スパコン TSUBAME を用いて初めて達成できたものである。

4. 今後の展望

今年度の成果により、大規模フェーズフィールド計算による 3 次元問題における複数デンドライト成長現象の解明に向けた研究をスタートすることができた。デンドライトは casting 時に形成される典型的な凝固組織形態であり、本シミュレーション手法の適用範囲は極めて広い。今年度のシミュレーション結果を用いて、現在複数の論文を執筆中である。今後、3-1-3 で行ったシミュレーションを更に大規模化させ、完全に 3 次元状態での 2 結晶競合成長を行う。また、3-1-4 の結果を詳細に考察し、必要であれば追加計算を行う。さらに、今後、液相の強制&自然対流を導入した一方向凝固シミュレーションを行い、液相の流れが一方向凝固現象に及ぼす影響を評価可能なコードを開発予定である。この際、流体シミュレーションには格子ボルツマン法を用いる。

5. 研究成果リスト

(1) 学術論文 (投稿中のものは「投稿中」と明記)

Phase-field modeling and simulations of dendrite growth, T. Takaki, ISIJ International, Vol.54, No.2, 2014/02, 437-444.

Unexpected selection of growing dendrites by very-large-scale phase-field simulation, T. Takaki, T. Shimokawabe, M. Ohno, A. Yamanaka, T. Aoki, Journal of Crystal Growth, Vol.382, 2013/11, 21-25.

(2) 国際会議プロシーディングス

無し

(3) 国際会議発表

Two-dimensional selection in dendritic growth of binary alloy by quantitative phase-field simulations, M. Horii, T. Takaki, M. Ohno, 5th Asia Pacific Congress on Computational Mechanics & 4th International Symposium on Computational Mechanics (APCOM & ISCM).

GPU Phase-Field Simulations of Dendrite Competitive Growth in Directional Solidification [invited], T. Takaki, The 8th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM8).

Large-scale phase-field simulations during directional solidification of binary alloy, T. Takaki, 平成 25 年度 CMRI(東北大学計算材料科学研究拠点)研究会 CMSI 特別支援課題「合金凝固組織の高精度制御を目指した dendrite 組織の大規模数値計算」, 2013 年 7 月 30 日.

Large-Scale Phase-Field Computations for Solidification Microstructure Design [Keynote], T. Takaki, The 3rd International Symposium on Cutting Edge of Computer Simulation of Solidification, Casting and Refining (CSSCR2013).

Phase-field Simulations of Competitive Dendritic Growth during Directional Solidification of Binary Alloy, M. Horii, T. Takaki, M. Ohno, The 3rd International Symposium on Cutting Edge of Computer Simulation of Solidification, Casting and Refining (CSSCR2013).

(4) 国内会議発表

定量的 phase-field モデルによる 3 次元一方向凝固シミュレーション, 高木知弘, 大野宗一, 日本鉄鋼協会第 167 回春季講演大会, 2014/03/21-23.

GPU スパコン TSUBAME による dendrite 淘汰現象の phase-field シミュレーション, 高木知弘, 下川辺隆史, 大野宗一, 山中晃徳, 青木尊之, 日本機械学会第 26 回計算力学講演会 CD-ROM 論文集, No. 13-3, 2013/11/2, 1614.

Al-Cu 合金の 2 次元 dendrite 競合成長シミュレーション, 堀井麻有, 高木知弘, 大野宗一, 日本機械学会第 26 回計算力学講演会 CD-ROM 論文集, No. 13-3, 2013/11/2, 1613.

Phase-field シミュレーションによる 2 次元 dendrite 淘汰メカニズムの解明, 高木知弘, 堀井麻有, 大野宗一, 日本鉄鋼協会第 166 回秋季講演大会, 2013/9/17-19.

定量的 phase-field モデルによる 2 次元 dendrite 競合成長シミュレーション, 堀井麻有, 高木

知弘, 大野宗一, 日本鉄鋼協会第 166 回秋季講演大会, 2013/9/17-19.

フェーズフィールドモデルとシミュレーション, 高木知弘, 2014 年 10 月 4 日.

一方向凝固 dendrite 競合成長の二次元 phase-field シミュレーション, 堀井麻有, 高木知弘, 大野宗一, 計算工学講演会論文集, Vol. 18, 2013/6/19-21, D-3-1.

産総研セミナー, フェーズフィールド法とそのき裂進展問題への応用, 高木知弘, 2013 年 7 月 5 日.

(5) その他 (特許, プレス発表, 著書等)

(受賞)

APACM Award for Young Investigators in Computational Mechanics For significant contributions in the field of computational mechanics, 高木知弘, 2013 年 12 月 12 日受賞.

日本鉄鋼協会「計算工学による組織と特性予測技術 II」研究会 最終報告会, 高木知弘, マルチフェーズフィールド法による再結晶シミュレーション, 2013 年 5 月 9 日.

一般社団法人日本機械学会 計算力学部門 第 91 期 (2013 年度) 業績賞, 高木知弘, 2013 年 11 月 3 日受賞.

一般社団法人日本機械学会 第 25 回計算力学講演会 (CMD2012) 優秀講演表彰, 高木知弘, 2013 年 6 月 14 日受賞.

(著書)

計算力学レクチャーコース フェーズフィールド法入門, 小山 敏幸, 高木知弘 共著, 丸善出版, 2013 年 4 月 13 日発行.

(国内招待発表)

Phase-field 法による材料組織形成シミュレーション, 高木知弘, 土木学会応用力学委員会 (東北地区) 特別講演会, 2013 年 12 月 18 日.

鉄鋼協会 材料の組織と特性部会 若手フォーラム 平成 25 年度第 2 回研究会, 高木知弘, Multi-phase-field モデルとシミュレーション, 2014 年 11 月 18 日.

溶接学会界面接合研究委員会, 凝固と粒成長のフ