

(論文)

フェーズフィールド法によるデンドライト形態予測による透過率評価

Characterization of Dendrite Morphology for Evaluating Interdendritic Permeability Based on Phase-field Simulation



石田 斉*(工博)



森 千修*(工博)



大笹憲一**(工博)

Dr. Hitoshi ISHIDA Dr. Yukinobu NATSUME Dr. Kenichi OHSASA

The evolution of dendrite morphology in Fe-base alloys was simulated by using the phase-field method, and the complexity of the dendrite morphology was evaluated by fractal dimensions and the dimensionless perimeter of dendrites. It was shown that the parameters of both the fractal dimensions and the dimensionless perimeter are effective in evaluating the complexity of dendrites. Factors controlling the dendrite morphology, such as material properties, composition, and cooling rate were investigated using the simulation. The permeability of a simulated dendrite array was estimated by the fractal dimensions and the dimensionless perimeter, and the permeability that was obtained corresponded to the reported permeability values for metallic alloy systems.

まえがき＝素形材の casting・凝固プロセスにおいて生成する引巣や偏析は、UT欠陥あるいは材料特性の不均一などの原因となる。引巣は従来より、伝熱計算における温度勾配や凝固速度によって、また偏析は局所平衡による溶質再分配によってその生成挙動の評価が行われている。いずれも、熱物性値の実測定や熱力学データベースとの連成によって予測精度を向上させることができる。

しかしながら、実際の凝固過程においては固液共存領域の流動現象も影響するため、伝熱パラメータや局所平衡に基づく検討だけでは十分に評価できない。固液共存領域における溶鋼流動は、デンドライト組織間に濃化した液相の透過率として評価される。铸造欠陥の生成挙動を決定する重要な因子である固液共存領域の透過率を、合金組成や凝固条件などを考慮して理論的にかつ定量的に評価することができれば、所望の合金の凝固過程における铸造欠陥の生成機構をより詳細に検討することが可能となる。

固液共存領域の透過率は、有機系材料をはじめ金属合金を対象に実験的に測定した結果が数多く報告されているが¹⁻¹⁰⁾、汎用的に使用されている多元系合金の透過率を数多くの実験で測定するには多大な労力とコストを必要とする。一方で、固液共存領域を多孔質媒体と仮定することによって理論的に透過率を見積る試みも検討されており、固液共存領域のマッシーゾーンにおける透過率と液相率の関係が capillary flow model と Darcy 則に基づいて得られている。しかしながら、デンドライト形態が複雑に変化しながら凝固する際の透過率を理論的な手法に基づいて評価することは非常に困難である。

そこで当社では、デンドライト間液相の透過率を評価

するため、デンドライト形態の影響を考慮して理論的・定量的に評価することを試みた。具体的には、Fe-C系合金のデンドライト形態の予測に対し、理論的な計算手法としてフェーズフィールド(Phase-field, 以下PFという)法を用いて求めた。また合金組成などの違いがデンドライト形態に及ぼす影響を考慮するため、平衡分配係数や固液界面エネルギー、デンドライト形態の異方性などの要因を評価した。最後に、フラクタル次元と無次元周囲長の二つの評価パラメータを用いて固液共存領域の液相透過率を定量的に評価する手法を提案した。

1. 計算モデル

1.1 PF法

デンドライト形態の予測にあたっては、ここ20年ほどの間に凝固組織形成シミュレーションの研究が盛んに行われるようになり、下記に示すいくつかの予測モデルが提案され開発が進められてきている。凝固組織予測モデルを凝固組織のサイズ別に分類すると、通常の結晶粒サイズのミリメートルオーダーでは Monte Carlo (MC) 法¹¹⁾ や Cellular Automaton (CA) 法^{12), 13)} が、デンドライト形態などのマイクロオーダーでは PF 法^{14)~19)} が一般に用いられている。

PF法では、液相から固相への変化に対応して値が0から1に変化するスカラ連続関数 ϕ (フェーズフィールド)を導入し、相成長を ϕ の時間変化として取扱う。これによって固液界面の複雑な境界条件を取扱わないで済む。またこの方法では、曲率効果や溶質分配などの界面条件は界面物性値から求めたパラメータによって自動的に満足され、界面の位置や形状、移動速度を決める必要がな

*技術開発本部 材料研究所 **秋田大学 工学資源学部 教授

い。このため、数値解析としては比較的簡単なロジックで計算プログラムが作成できる。複雑なデンドライト形態を計算機上で正確に予測することができる非常に強力なツールとして近年目覚ましい発展を遂げ、多元系合金、多相系合金へと拡張されている。

当社ではデンドライト形態の予測にこの PF 法を採用した。あわせて、Kim ら¹⁵⁾によって報告されている KKS モデルを用い、界面領域では Thin interface limit モデルを適用した。

2 元系合金における ϕ の支配方程式は以下のとおりとなる。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M(\epsilon^2 \nabla^2 \phi - f_\phi) \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot \left[\frac{D(\phi)}{f_{cc}} \nabla f_c \right] \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 c はモル分率、 M および ϵ はフェーズフィールドパラメータ、 $D(\phi)$ は溶質の拡散係数である。下添字付き f はその添字変数による一次または二次微分である。

合金系の PF モデルでは、自由エネルギー密度関数 $f(c, \phi)$ は溶質濃度 c の関数として与えられる。液相と固相の自由エネルギーおよび二重井戸型ポテンシャル $Wg(\phi)$ の和であり、界面領域における溶質濃度は固相率で重み付けした式で表される。

$$f(c, \phi) = h(\phi)f^s(c_s) + [1-h(\phi)]f^l(c_l) + Wg(\phi) \quad \dots (3)$$

$$c = h(\phi)c_s + [1-h(\phi)]c_l \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 $h(\phi) = \phi^2(3-2\phi)$ 、 $g(\phi) = \phi(1-\phi)$ であり、 W はフェーズフィールドパラメータ、下付添字の S と L はそれぞれ固相と液相を表している。

フェーズフィールドパラメータの ϵ と W は界面エネルギー σ と界面領域の幅 2λ に関係し、以下の式で表される。

$$\sigma = \frac{\epsilon \sqrt{2W}}{8} \pi \quad \dots\dots\dots (5)$$

$$2\lambda = \frac{\epsilon}{\sqrt{2W}} \pi \quad \dots\dots\dots (6)$$

Thin interface limit の条件から導かれる易動度 M はカイネティック係数 μ_k と界面での固相濃度・液相濃度に依存する。

$$M = (M_k + M_d)^{-1} \quad \dots\dots\dots (7)$$

$$M_k = \frac{\epsilon^2 RT}{\sigma V_m m \mu_k} \frac{1-k_0}{1}$$

$$M_d = \frac{\epsilon^3}{D\sigma\sqrt{2W}} f_{cc}^s(C_s^\epsilon) f_{cc}^l(C_l^\epsilon) (C_l^\epsilon - C_s^\epsilon)^2 \times$$

$$\int_0^1 \frac{h(\phi_0)[1-h(\phi_0)]}{[1-h(\phi_0)]f_{cc}^s(C_s^\epsilon) + h(\phi_0)f_{cc}^l(C_l^\epsilon)} \frac{d\phi_0}{\sqrt{\phi_0(1-\phi_0)}}$$

ここで、 R は気体定数、 T は温度、 V_m はモル体積、 k_0 は平衡分配係数、 m は液相線温度勾配、 μ_k は線形のカイネティック係数、上付添字の e は平衡状態を意味する。金属のようにカイネティック係数が十分大きい系では式

(7) の右辺第 1 項を省略して、モビリティの関係は $M = M_d^{-1}$ と書き直せる。三元系合金の希薄溶液近似を適用すると、KKS モデル¹⁵⁾と同様の支配方程式を使用する

表 1 Fe-C 合金, Fe-C-Mn 合金の計算に使用した物性値
Table 1 Material properties of Fe-C alloy and Fe-C-Mn ternary alloys used in the simulation

	Fe-0.15%C	Fe-0.15%C-0.5%Mn
Partition coefficient of C, $k_{0,c}$	0.173	0.174 (at 1,785K)
Partition coefficient of Mn, $k_{0,Mn}$	—	0.724 (at 1,785K)
Diffusivity of C in Solid, $D_{s,c}$ [m^2/s]	6.0×10^{-9}	6.0×10^{-9}
Diffusivity of C in Liquid, $D_{l,c}$ [m^2/s]	2.0×10^{-8}	2.0×10^{-8}
Diffusivity of Mn in Solid, $D_{s,Mn}$ [m^2/s]	—	1.0×10^{-12}
Diffusivity of Mn in Liquid, $D_{l,Mn}$ [m^2/s]	—	1.0×10^{-9}
Molar volume of Fe, $V_{m,Fe}$ [m^3/mol]	7.59×10^{-6}	7.59×10^{-6}
Molar volume of C, $V_{m,C}$ [m^3/mol]	5.3×10^{-6}	5.3×10^{-6}
Molar volume of Mn, $V_{m,Mn}$ [m^3/mol]	—	8.8×10^{-6}
Interfacial energy, σ [J/m^2]	0.204	0.204
Anisotropy parameter, ϵ_4	0.03	0.03

ことができる。

1.2 計算条件

計算では、式 (1) と式 (2) を均一要素で離散化し、陽的差分法で数値的に解くことができる。ここでは、Fe-0.15mass%C 二元系合金および Fe-0.15mass%C-0.5mass%Mn 三元系合金を対象として選定し、表 1 に示した物性値を用いて計算した。Fe-0.15mass%C-0.5mass%Mn 三元系合金の熱物性データは Thermo-Calc を使用して求め、固液界面での平衡組成は温度の関数として与えた。カイネティック係数 μ_k は金属系において非常に大きいことから、動的過冷を無視してフェーズフィールドの易動度を決定した。

また、PF 法の固液界面の異方性は通常、界面エネルギーに関係するフェーズフィールドパラメータ ϵ で導入され、式 (8) に示すように 2 次元の 4 回対称性の関係として表される。

$$\epsilon(\theta) = \epsilon[1 + \epsilon_4 \cos(4\theta)] \quad \dots\dots\dots (8)$$

ここで、 ϵ_4 は異方性の度合いを表し、 $\epsilon_4 < 1/15$ を満たす。 θ は x 軸と固液界面のなす角度を表す。

計算では二つの二次元長方形領域 $1,000 \times 500$ メッシュおよび $1,200 \times 400$ メッシュを用いた。要素サイズは、計算条件に応じて $0.02 \times 10^{-6}m$ 、 $0.2 \times 10^{-6}m$ 、および $0.4 \times 10^{-6}m$ の三つのサイズを使用した。初期の固液平滑界面は計算領域の下部に配置し、デンドライト二次アームの成長を計算した。また境界条件は、計算領域の上側および左右の境界に対して断熱条件と周期境界条件を設定した。このようにして求められたデンドライト形態は次章で示す。なお計算時間短縮のため、実際の計算は半分の領域で実施し、 x 軸を対称に反転させることによってデンドライト形態を表現した。

1.3 デンドライト形態の評価

1.3.1 フラクタル次元

70 年代に B. B. Mandelbrot が、自然界で観察される形状における自己相似性を表す新たな概念としてフラクタルを提唱した。それから現在に至るまで、複雑形状を定量的に評価する手法の一つとしてフラクタル理論が発展し、近年では材料の組織形態を記述する手法としてフラクタル理論を適用することに成功している^{20)~24)}。Yang ら²³⁾ は、Ni 基合金の凝固組織においてさまざまな冷却条件下でのデンドライト状組織およびセル状組織をフラ

クタル次元で評価している。さらに Sanyal ら²⁴⁾ は、凝固過程のデンドライトネットワークを有する組織にフラクタル次元を適用してマッシーゾーンの透過率を求めている。

そこで当社では「フラクタル次元」をデンドライト形態の定量的な評価に用いることを試み、フラクタル次元の算出にボックスカウント法²⁵⁾を適用した。ボックスカウント法の適用方法は、まず、PF法で求めたデンドライト形態が存在する解析範囲を1辺 r の正方形メッシュに分割する。このとき、固液境界を含むメッシュの個数を N とすると、固液界面の長さはおおよそ $r \times N$ として求められる。さらにメッシュサイズ r を変更し、複数のメッシュサイズ r に対する固液界面長さ $r \times N$ を求めることを繰り返す。このとき、デンドライト形態のフラクタル次元 D は式(9)のように表される。

$$N(r) = r^D \dots \dots \dots (9)$$

このようにして求めた r と N に対して $\log r$ と $\log N$ をプロットした場合、フラクタル次元 D は直線の傾き($D = \log N / \log(1/r)$)として求めることができる。

1.3.2 無次元周囲長

デンドライト形態を評価する別の手法として、フラクタル次元に代わる新たな評価指標として「無次元周囲長」の概念を導入した。無次元周囲長は次のように定義した。

PF法によって求められたデンドライト形態の界面の周囲長を L_I 、その面積を S_I する。面積 S_I と同じ面積を持つ円の円周を L_2 としたとき、 L_I/L_2 を「無次元周囲長 L 」とする。

このように、周囲長を無次元化して定義することによってデンドライト形態を数値化できると考えられる。また、デンドライト形態が複雑になるほど周囲長は増加するため、それに伴って無次元周囲長も大きくなる。したがって無次元周囲長はデンドライト形態を表すのに有効なパラメータと考えられる。

2. 結果と考察

2.1 PF法によるデンドライト形態の予測

凝固過程における固液共存領域でのデンドライト間溶鋼流動の評価方法を検討した。二次元のPF法シミュレーションにより求めたデンドライト形態に基づき、「フラクタル次元 D_f 」および「無次元周囲長 L 」を用いてデンドライト形態を定量的に評価することを試みた。

まず、Fe-0.15mass%C二元系合金に二次元のPF法を適用し、デンドライト形態を計算によって求めた。図1にその計算結果を示す。デンドライト成長過程の計算では表1に示した条件を用いた。

図1(A)は基準となる計算条件でのデンドライト成長過程を示している。凝固の進行とともにデンドライトアームが発達し、液相率は減少していく。デンドライトの成長過程において、ある側枝は優先的に成長し、ある側枝は成長が抑制され再溶解していることが確認できる。

さらに、材料物性がデンドライト形態に及ぼす影響を確認するため、計算条件をつぎのように仮想的に変更した。(B)は平衡分配係数 k_0 を2倍に、(C)は界面エネルギー

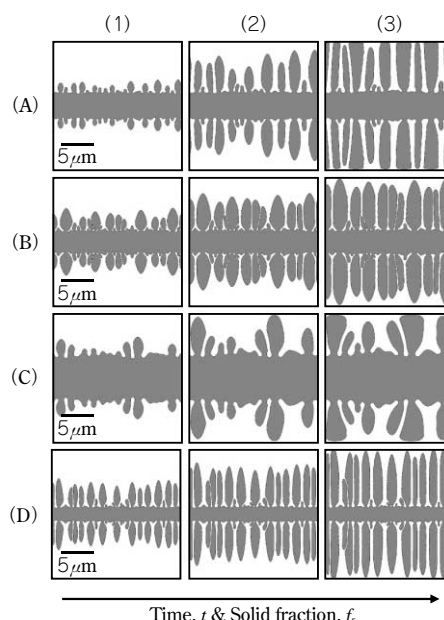


図1 フェーズフィールド法で計算したデンドライト成長過程 (Fe-0.15mass%C alloy at 1780K)
(A) 基準条件(表1), (B) $k_0 \times 2$, (C) $s \times 2$, (D) $\epsilon_4 \times 2$

Fig. 1 Evolution of dendrite morphology in Fe-0.15mass%C alloy at 1780K simulated by Phase-field method. (A) Results of the standard condition shown in Table 1, (B) $k_0 \times 2$, (C) $s \times 2$, (D) $\epsilon_4 \times 2$

表2 図1の各デンドライト形態における液相率、フラクタル次元、無次元周囲長

Table 2 Values of liquid fraction, f_L , fractal dimension, D_f , and dimensionless perimeter, L , for each dendrite morphology shown in Fig.1

	Liquid Fraction, f_L	Fractal Dimension, D_f	Dimensionless Perimeter, L
A-1	0.738	1.266	3.362
A-2	0.516	1.268	5.183
A-3	0.297	1.345	5.953
B-1	0.668	1.353	4.852
B-2	0.478	1.358	5.901
B-3	0.286	1.373	6.903
C-1	0.582	1.200	2.438
C-2	0.427	1.223	3.189
C-3	0.318	1.219	3.462
D-1	0.708	1.444	7.200
D-2	0.541	1.459	8.438
D-3	0.372	1.464	9.357

を2倍に、(D)は異方性パラメータ ϵ_4 を2倍にしたものである。図1(B),(C)および(D)にその結果を示す。

この結果から、凝固過程におけるデンドライト形態はこれらの材料物性の影響を大きく受けることがわかった。デンドライトの複雑さは、平衡分配係数 k_0 および異方性パラメータ ϵ_4 が増加すると側枝が増えて複雑になる。一方、界面エネルギー σ が増加すると側枝の発達が抑制されてデンドライト形態は単純になることがわかる。デンドライト形態の複雑さは計算条件によって変化し、複雑さは高い順に(D) > (B) > (A) > (C)という結果となっている。

2.2 フラクタル次元と無次元周囲長

図1に示したデンドライト形態を定量的に評価するため、フラクタル次元と無次元周囲長を用いて評価した。表2にそれぞれのデンドライト形態における液相率 f_L 、フラクタル次元 D_f 、および無次元周囲長 L を示す。

また、図2および図3に、液相率 f_L の低下に伴うフラクタル次元 D_f および無次元周囲長 L の変化を示した。この図からわかるように、液相率 f_L が低下するに従ってフラクタル次元 D_f および無次元周囲長 L は増加する。とくに無次元周囲長 L はその傾向が顕著に現れている。さらに、計算した液相率の範囲では、フラクタル次元 D_f および無次元周囲長 L は、高い順に(D) > (B) > (A) > (C)という結果となっている。この順は、図1に示したデンドライト形態の複雑さと一致しており、フラクタル次元 D_f および無次元周囲長 L はデンドライト形態を定量的に評価できる有効な指標であると考えられる。また、図2に示したフラクタル次元 D_f の値は、1.2~1.5の範囲で変化している。これは、2次元平面内の形状のフラクタル次元が1~2の範囲であることから妥当な結果と考えられる。一方で、無次元周囲長 L の値は2~10となっている。無次元周囲長は、デンドライト形態が複雑になればなるほど増加するため、形状の差を表しやすいと考えられる。

図4はフラクタル次元 D_f と無次元周囲長 L の関係を示している。 D_f と L は $D_f=1.2\sim 1.5$ の範囲内では比例関係にあり、かつ L のほうが $L=2\sim 10$ の範囲でより大きく変化することから、定量的な評価パラメータとして無次元周囲長 L のほうがより有効であることを示している。

2.3 デンドライト間流動

多孔質媒体を通過する流動はDarcy則で記述され、平均流速 v は式(10)のように表される。

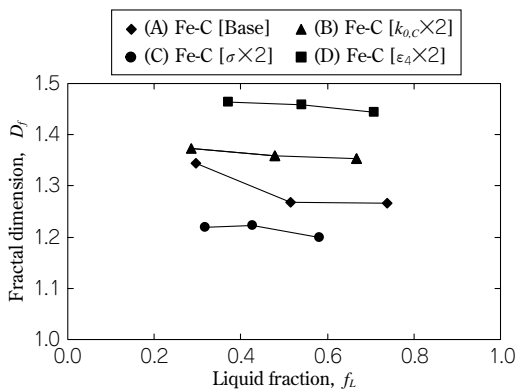


図2 液相率増加に伴うフラクタル次元の変化

Fig. 2 Change in fractal dimension, D with increase in liquid fraction, f_L

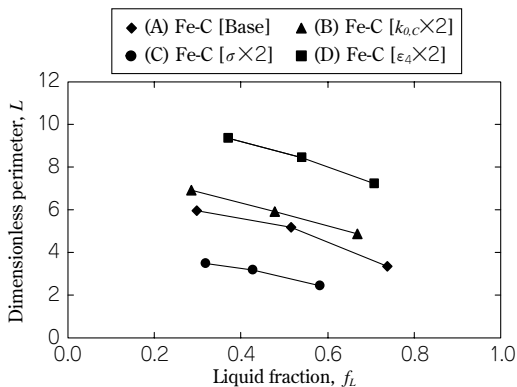


図3 液相率増加に伴う無次元周囲長の変化

Fig. 3 Change in dimensionless perimeter, L with increase in liquid fraction, f_L

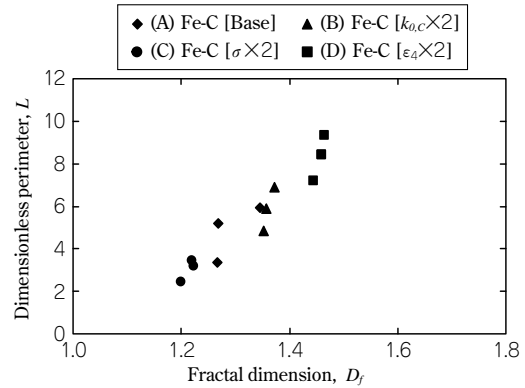


図4 フラクタル次元と無次元周囲長の関係

Fig. 4 Relationship between fractal dimension, D , and dimensionless perimeter, L

$$v = \frac{K}{\mu L} \Delta P \dots \dots \dots (10)$$

ここで K は透過率(m^2)、 μ は液相の粘性($Pa \cdot s$)、 L は多孔質媒体の長さ(m)、 ΔP は圧量降下量(Pa)を表す。

これまで、凝固過程の合金のデンドライト間液相流動の研究が数多く行われてきた。これらの研究においては、デンドライト間の流動はDarcy則に従うとして取扱われ、デンドライトネットワークの流動性は透過率として評価できる。

Piwonkaらは、マッシュゾーンを多くのチャンネルを持つ媒体として扱うことによって、固液共存領域の透過率 K を式(11)のように表現した²⁶⁾。

$$K = \frac{g_L^2}{8\pi n \tau^3} \dots \dots \dots (11)$$

ここで K は透過率(m^2)、 g_L は液相の体積率、 n は単位面積あたりのチャンネル数(m^2)、 τ はtortuosity factorである。tortuosity factorはチャンネルの複雑さを表したパラメータである。

式(11)において、チャンネル数がデンドライトアーム数に等しいと仮定すると、これらのチャンネルの間隔はデンドライトアーム間隔 λ_2 に等しく $n=1/(\lambda_2)^2$ となって式(12)が得られる。

$$K = \frac{g_L^2 \lambda_2^2}{8\pi \tau^3} \dots \dots \dots (12)$$

凝固条件からデンドライトアーム間隔 λ_2 およびtortuosity factor τ の値を決めることができれば、式(12)から透過率を求めることができる。ここで、tortuosity factor τ はデンドライト形態の複雑さを意味するパラメータである。デンドライト形態の複雑さは、図2および図3に示したようにフラクタル次元と無次元周囲長で表すことができる。したがって、tortuosity factor τ の値は、PF法で求めたデンドライト形態からフラクタル次元と無次元周囲長に比例するものと期待される。最も単純な場合として、tortuosity factor τ の値がフラクタル次元もしくは無次元周囲長と等しいと仮定すると、デンドライト間液相の透過率を評価することが可能となる。

図5は、式(12)に従い、フラクタル次元をtortuosity factor τ と等しいと仮定して液相率 f_L と K/λ_2^2 の関係を示したものである。 K/λ_2^2 の値は液相率 f_L が減少すると

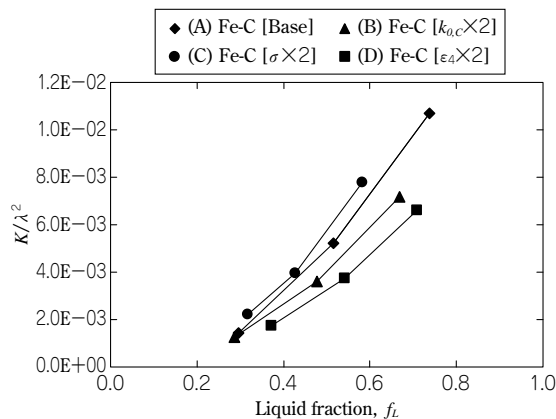


図5 フラクタル次元が tortuosity factor と等しいと仮定した場合の液相率と K/λ_2^2 の関係

Fig. 5 Relationship between liquid fraction, f_L , and K/λ_2^2 assumed that fractal dimension, D , is tortuosity factor.

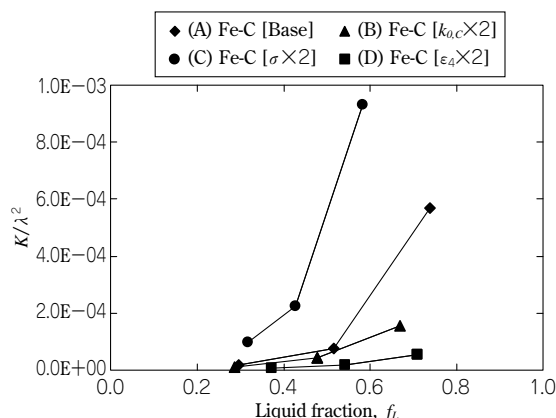


図6 無次元周囲長が tortuosity factor と等しいと仮定した場合の液相率と K/λ_2^2 の関係

Fig. 6 Relationship between liquid fraction, f_L , and K/λ_2^2 assumed that dimensionless perimeter, L , is tortuosity factor

ともに低下し、(C) > (A) > (B) > (D)の順に小さくなることわかる。同様に図6は、無次元周囲長を tortuosity factor τ と等しいと仮定して液相率と K/λ_2^2 の関係を示したものである。 K/λ_2^2 の値は液相率が減少するとともに低下し、(C) > (A) > (B) > (D)の順に小さくなることわかる。また特徴として、 K/λ_2^2 の値は液相率の低い領域で非常に大きいことわかる。これは、低固相率の条件では無次元周囲長の値が非常に大きいことに関係していると考えられる。

このように、デンドライトアーム間隔 λ_2 を実験もしくは理論的な方法で求めることができれば、 K/λ_2^2 の値から透過率 K を求めることができる。

2.4 透過率決定のための制御因子

前節で示したように、デンドライト間液相の透過率は、PF法やフラクタル次元、無次元周囲長を用いてデンドライト形態を評価することによって求めることができる。

一方、デンドライト形態は冷却速度や合金成分などによっても変化することが知られている。このため、デンドライト形態を制御する主要な因子を明らかにすることができれば、デンドライト形態を制御することによって透過率を制御することも可能になると考えられる。

多元系合金の製造に際し、引巣欠陥やマクロ偏析、逆

V偏析などの铸造欠陥を抑制・制御するには、さまざまな铸造条件において固液共存領域の液相流動を制御する必要があり、そのためには透過率を制御する必要がある。

2.1節で説明したように、デンドライト形態は、平衡分配係数 k_0 および異方性パラメータ ϵ_4 が増加すると側枝が増えて複雑になるが、界面エネルギー σ が増加すると側枝の発達が抑制されて単純になることがわかっている。しかしながら、多元系合金の物性制御において、界面エネルギーや異方性パラメータを制御することは困難である。実際に制御可能なパラメータとしては、合金成分の平衡分配係数を決定付ける合金成分や铸造時の冷却速度が有効である。

そこで、鉄基合金における冷却速度や合金成分がデンドライト形態に及ぼす影響を評価するため、上記の手法で透過率を算出して評価した。

計算にあたっては、本来であれば合金成分の変化が固液の界面エネルギーや異方性パラメータに及ぼす影響を考慮しなければならない。しかしながら、各元素添加による界面エネルギーや異方性パラメータの影響を考慮することは非常に困難である。そのためここでは、冷却速度や合金成分のみの影響を考慮した場合を仮定し、表1に示した条件で行った。

計算結果の一例として低液相率での三つの計算条件での結果を図7に示した。図7における計算条件は、(A) Fe-0.15mass%C, $R_c=50\text{K/s}$, (B) Fe-0.15mass%C, $R_c=100\text{K/s}$, (C) Fe-0.15mass%C-0.5mass%Mn, $R_c=100\text{K/s}$ である。ここで R_c は冷却速度である。フラクタル次元と無次元周囲長の評価結果も図7中に併せて示している。デンドライト形態は冷却速度の増加および合金成分のMn添加により複雑になり、これらの評価指標も増加することがわかる。そこで図7よりデンドライトアーム間隔を測定し、式(12)に従って透過率を算出した。

図8は、デンドライト形態をフラクタル次元もしくは無次元周囲長で定量化した数値を用い、それぞれが tortuosity factor τ に等しいと仮定して透過率を求めたものである。Fe-C-Mn合金では、フラクタル次元、無次元周囲長のいずれも液相率が低くなるとともに透過率も低下している。一方、Fe-C合金でのフラクタル次元においては、いずれの冷却速度の条件においても、低液相率

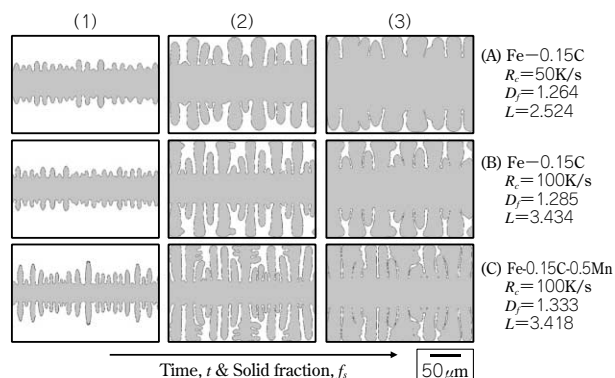


図7 デンドライト形態に及ぼす冷却速度と組成の影響

Fig. 7 Effects of cooling rate and composition on the dendrite morphology in Fe-base alloy simulated by Phase-field method

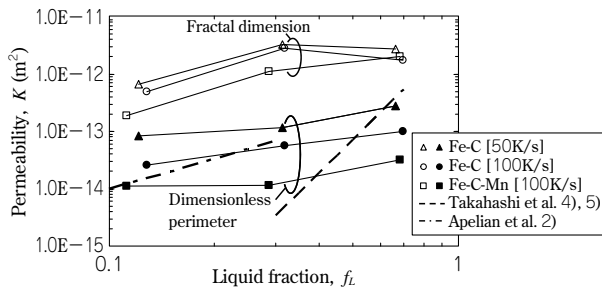


図8 図7に示した dendrite 形態および参考文献2), 4), 5) から求めた透過率
Fig. 8 Evaluated permeability, K , from the fractal dimension, D_f , and dimensionless perimeter, L , of the dendrite morphologies shown in Fig.7. and the permeability reported in Ref.2, 4 and 5

では液相率が低くなるとともに透過率も低下する関係にあるが、高液相率では逆に透過率が低下している。この原因としては、液相率が0.7以上の高液相率領域では dendrite ネットワークが十分に形成されておらず、透過率を正確に評価することが難しいためと考えられる。さらに、図8ではフラクタル次元を直接 tortuosity factor τ と等しいと仮定しており、この2次元での計算においては、図2に示したようにフラクタル次元は1.2~1.5の比較的狭い範囲にある。したがって、式(12)において、tortuosity factor τ としてフラクタル次元を用いた場合、液相率が高い場合には dendrite アーム間隔 λ_2 の値の影響が大きくなり、透過率の値が逆の結果となることがあり得るものと考えられる。

一方、無次元周囲長の場合には液相率が低くなるとともに透過率も低下しており、その関係は全領域にわたって比例関係にある。これは、無次元周囲長が2~10の比較的広い範囲にあることから(図3)、液相率が高い領域においても液相率と透過率が比例関係にあるのではないかと考えられる。

また図8には金属材料の合金系(Al-4%Si合金, steel)において過去に報告されている透過率の実測値^{2), 4), 5)}を示した。本稿での計算で無次元周囲長から求めた透過率の値は $1.1 \times 10^{-14} \sim 2.7 \times 10^{-13}$ であり、過去の報告値とほぼ同等であることがわかる。

以上のことから、tortuosity factor τ として無次元周囲長を用いて求めた透過率はほぼ妥当なものと考えられるが、tortuosity factor τ としてフラクタル次元を用いる場合には、直接等しいとして用いるのではなく何らかの関数として使用することが望ましいと考えられる。フラクタル次元を用いる方法として、図4に示したフラクタル次元と無次元周囲長との相関関係を用いてフラクタル次元を無次元周囲長に換算し、tortuosity factor の値として代入することで透過率を評価することが期待できる。実際の鋳塊の dendrite 組織において複数の dendrite 組織が関係する場合、無次元周囲長を算出することは困難であるが、フラクタル次元は画像解析的に算出することが比較的容易である。したがって、フラクタル次元を用いて透過率を評価する手法は、実鋳塊の実用的な面からも非常に有効な指標であると考えられる。

以上により、透過率をさまざまな鋳造条件下において PF 法で計算した dendrite 形態の結果を用い、フラ

クタル次元や無次元周囲長で dendrite 形態を定量的に評価することによって dendrite 間の透過率を評価できることを示した。

むすび＝本稿では、フラクタル次元と無次元周囲長をフェーズフィールド法で計算した dendrite 形態の結果を用いて定量的評価を行った。その結果、フラクタル次元および無次元周囲長は dendrite 形態の複雑さを評価するのに有効な指標であることを示した。

さらに、このようにして評価したフラクタル次元と無次元周囲長を活用し、Fe-0.15mass%C 二元系合金と Fe-0.15mass%C-0.5mass%Mn 三元系合金を対象として dendrite 間の液相流動の透過率を評価した。また、算出した透過率の値は $1.1 \times 10^{-14} \sim 2.7 \times 10^{-13}$ であり、金属材料の合金において過去に他の研究者らによって報告されている値とほぼ同等であり、妥当な結果であることがわかった。

一方、フラクタル次元を用いる方法として、フラクタル次元と無次元周囲長との相関関係を用いてフラクタル次元を無次元周囲長に換算し、tortuosity factor の値として代入することによって透過率を評価することが期待できる。これは、複数の dendrite 組織からなる実鋳塊組織に適用する場合に、フラクタル次元を画像解析的に求めることが比較的容易なため、実用的には非常に有効な手法と考えられる。

すなわち本手法は、PF 法を用いた計算結果によってさまざまな鋳造条件下での dendrite 形態を予測し、合金の透過率を定量的に求めることができることを明らかにした。

参考文献

- 1) T. S. Pivonka et al. : Trans. metall. Soc. A. I. M. E., 236(1966), 1157.
- 2) D. Apelian et al. : Metall. Trans., 5(1974), 2533.
- 3) N. STREAT et al. : Metall. Trans., 7B(1976), 417-423.
- 4) T. Takahashi et al. : Nippon-Kinzoku-Gakkaishi, 43(1979), 1086.
- 5) T. Takahashi et al. : Tetsu-to-Hagane, 68(1982), 623.
- 6) R. NASSER-RAFI et al. : Metall. Trans., 16A(1985), 2263-2271.
- 7) D. R. POIRIER : Metall. Trans., 18B(1987), 245-255.
- 8) K. MURAKAMI et al. : Acta Metall., 31(1983), 1417-1424.
- 9) K. MURAKAMI et al. : Acta Metall., 32(1984), 1423-1428.
- 10) K. MURAKAMI et al. : Acta Metall., 32(1984), 1741-1744.
- 11) J. A. Spittle et al. : Acta Metall. Mater., 37(1989), 1803.
- 12) M. Rappaz et al. : Acta Metall. Mater., 41(1993), 345.
- 13) L. Nastac : Acta Mater., 47(1999), 4253.
- 14) R. Kobayashi : physica D, 63(1993), 410.
- 15) S. G. Kim et al. : Phys. Rev E, 60(1999), 7186.
- 16) A. Karma et al. : Phys. Rev. E, 57(1998), 4323.
- 17) M. Ode et al. : ISIJ Int., 40(2000), 870.
- 18) Y. Natsume et al. : Mater. Trans., 44(2003), 819.
- 19) Y. Natsume et al. : Mater. Trans., 44(2003), 824.
- 20) T. Kleiser et al. : Z. Metallkd., 77(1986), 582.
- 21) E. Hornbogen : Z. Metallkd., 78(1987), 622.
- 22) M. J. Tanaka : Mater. Sci., 27(1922), 4712.
- 23) A. Yang et al. : Sci. Tech. Adv. Mat., 2(2001), 101.
- 24) D. Sanyal et al. : Chem. Eng. Sci., 61(2006), 307.
- 25) N. Matsushita : "Furakutaru no Buturi", Shokabou, (2002), p.36.
- 26) T. S. Pivonka et al. : Trans. Met. Soc., AIME, 236(1966), 1157.