

平成30年9月21日（金）

平成30年度 第2回 日本工学アカデミー北海道・東北支部 講演会

スパコンで加速する新材料開発

–ミクロ組織の予測と制御–

北海道大学 大学院工学研究院
材料科学部門
大野宗一



<http://www.tokyo-skytree.jp/>



<http://www.ana.co.jp/>



<https://sorae.info/>



北海道大学 大学院工学研究院
材料科学部門
(金属工学・冶金工学)



<http://toyota.jp/>



<https://panasonic.jp/>



<https://special.kawasaki-motors.com/>



<https://www.kyocera.co.jp/>



<https://www.apple.com/jp/>

材料の種類

構造材料

形状・構造を保つための強度を担う材料

<http://www.nssmc.com>



<http://toyota.jp/>



<http://www.ana.co.jp/>

<http://www.jsw.co.jp>



<http://store.apple.com>



<http://www.furukawa-sky.co.jp>

<http://www.nssmc.com>

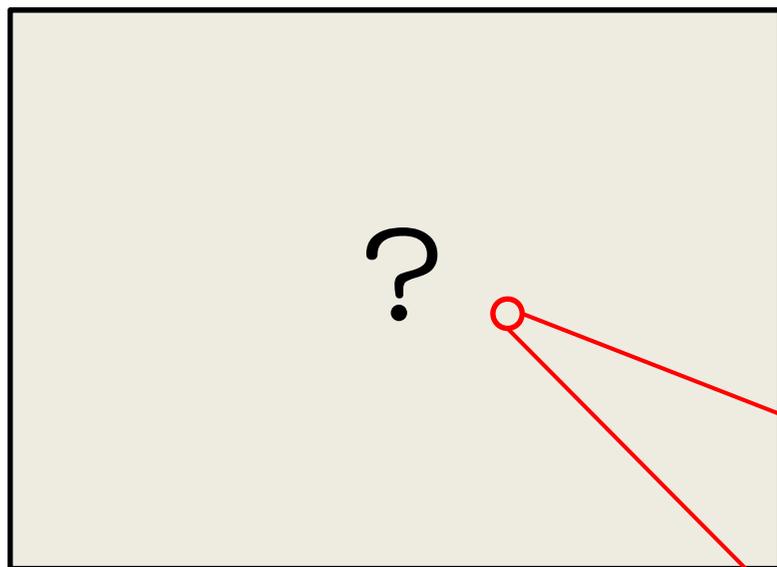


<http://www.jfe-steel.co.jp>

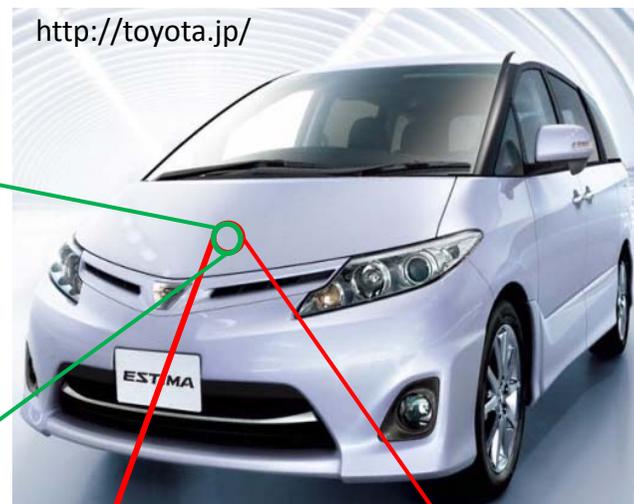


金属材料の時空スケール

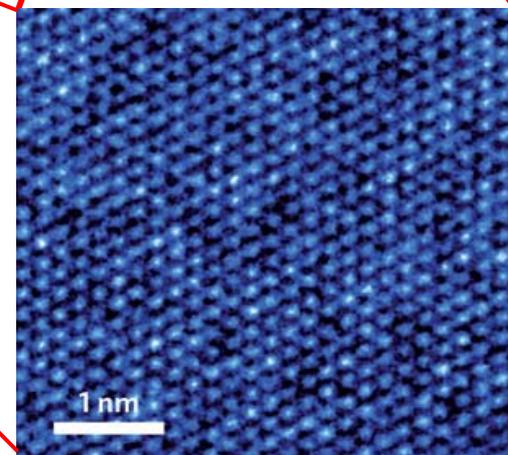
メゾ・スケール
($10^{-8}\text{m} \sim 10^{-3}\text{m}$ 程度)



マクロ・スケール
(ミリメートル 10^{-3}m 以上)

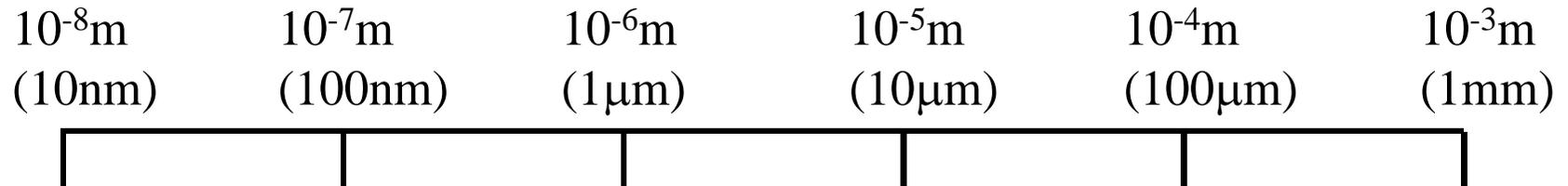


ミクロ・スケール (電子・原子)
(ナノメートル 10^{-9}m ・レベル)

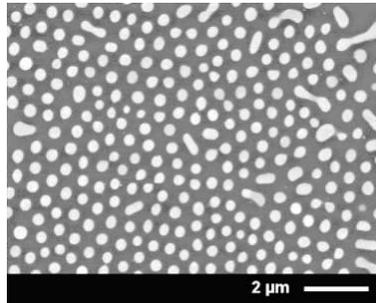


E.Ma & Z. Zhang, Nature Mater. (2011).

材料組織のスケール ($10^{-8}\text{m} \sim 10^{-3}\text{m}$ 程度)

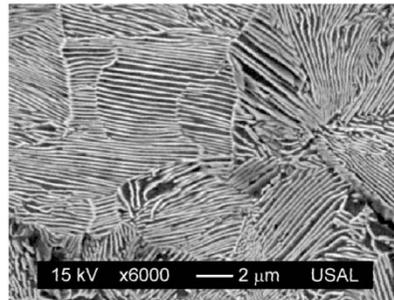


Nb-Si合金

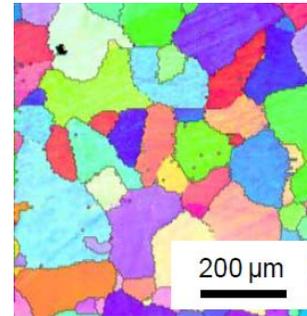


<http://www.onera.fr>

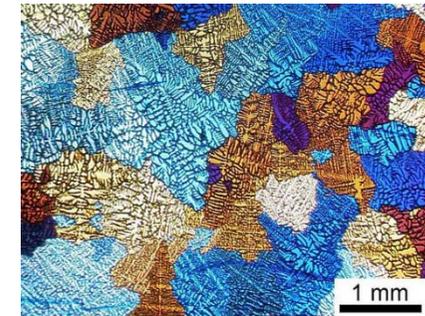
鋼



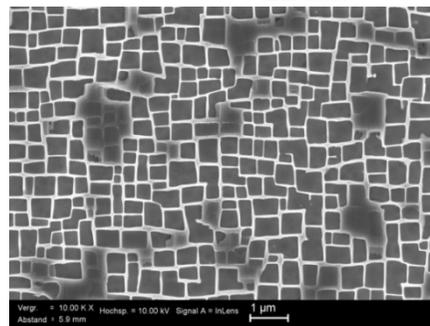
Mg合金



Al合金



Ni-Al合金



Au-Cu合金

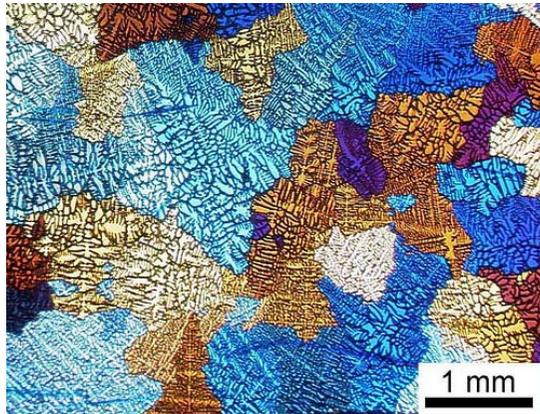


<http://www.totalmateria.com>

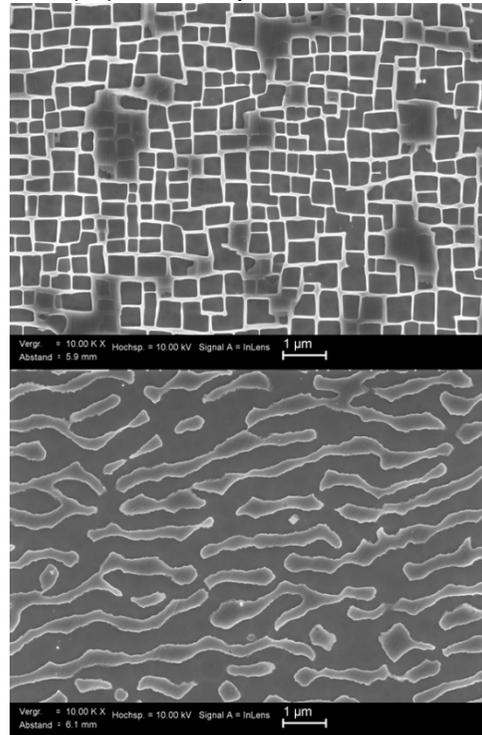
材料組織

数十nm～数mmのスケールで観察される結晶や溶質元素の不均一パターン

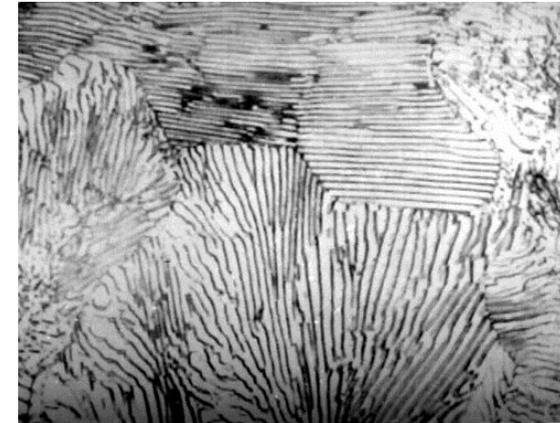
凝固組織 (Al合金)



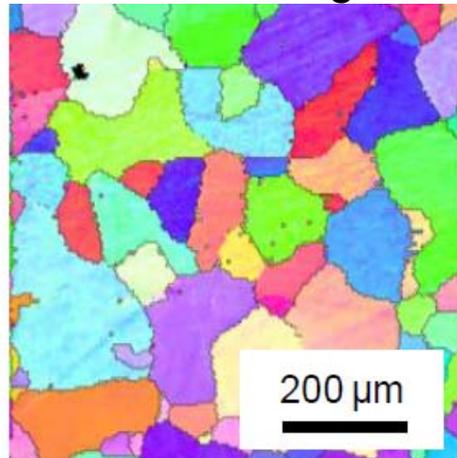
γ/γ' 組織(Ni基合金)



パーライト組織(鉄鋼)



多結晶組織 (Mg合金)



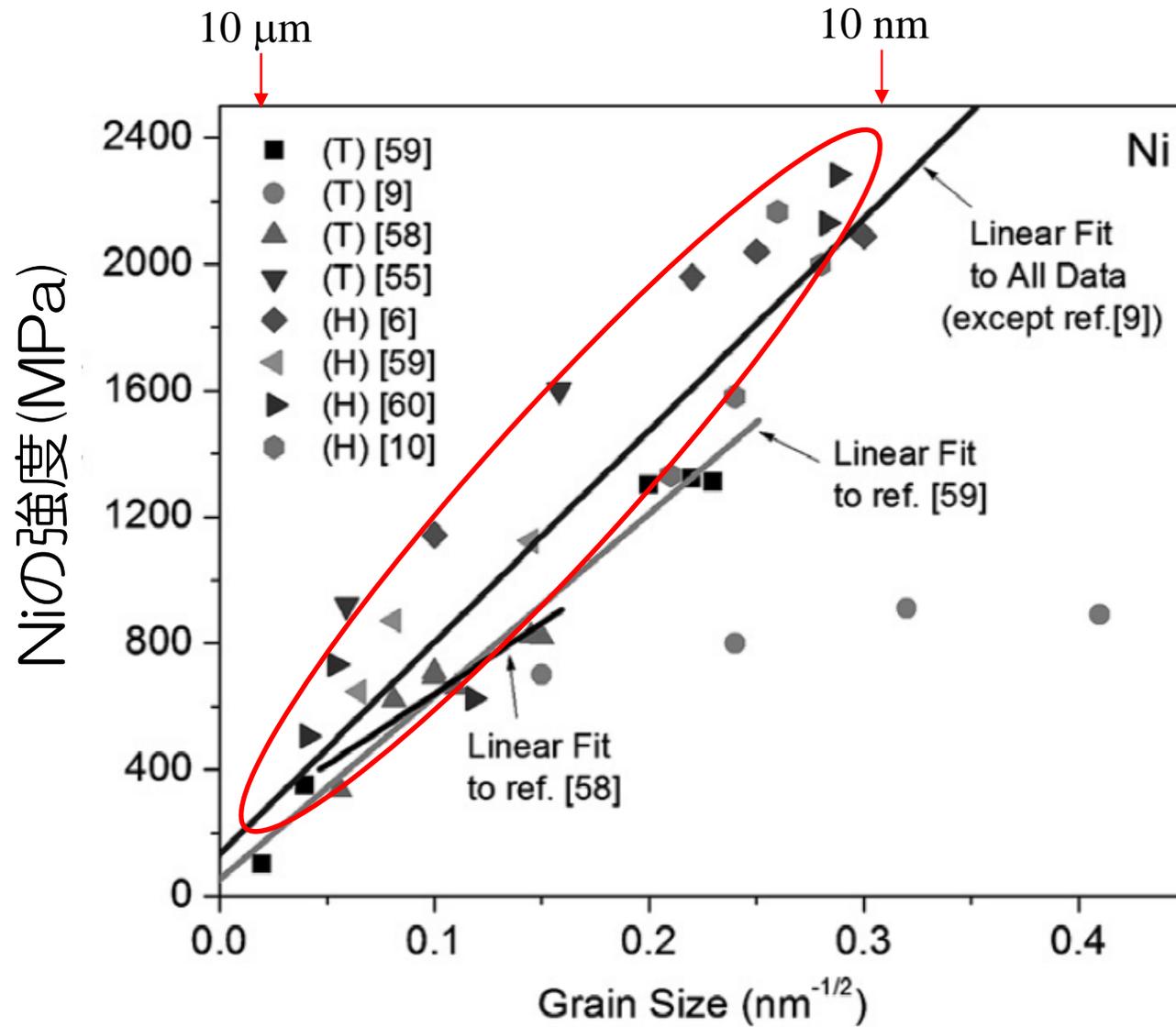
転位セル構造(銅合金)



材料特性・性能

結晶粒微細化強化、加工硬化、析出強化、複合強化

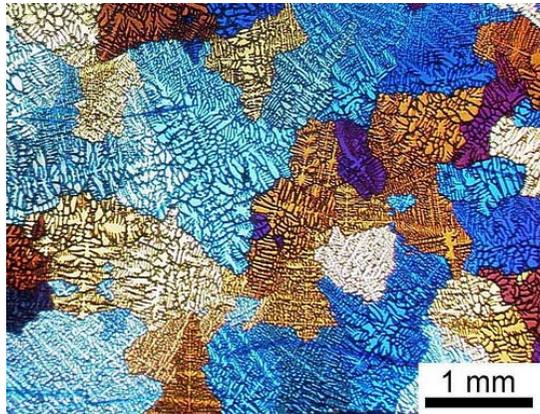
結晶粒のサイズと強度の関係



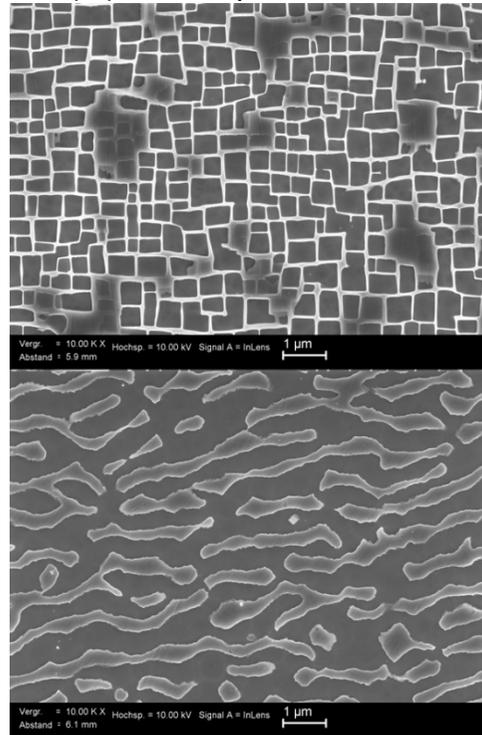
材料組織

数十nm～数mmのスケールで観察される結晶や溶質元素の不均一パターン

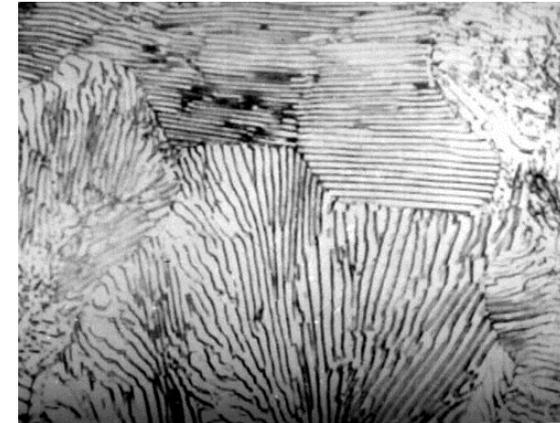
凝固組織 (Al合金)



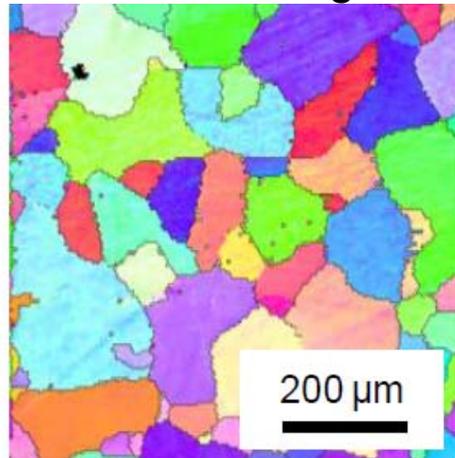
γ/γ' 組織(Ni基合金)



パーライト組織(鉄鋼)



多結晶組織 (Mg合金)



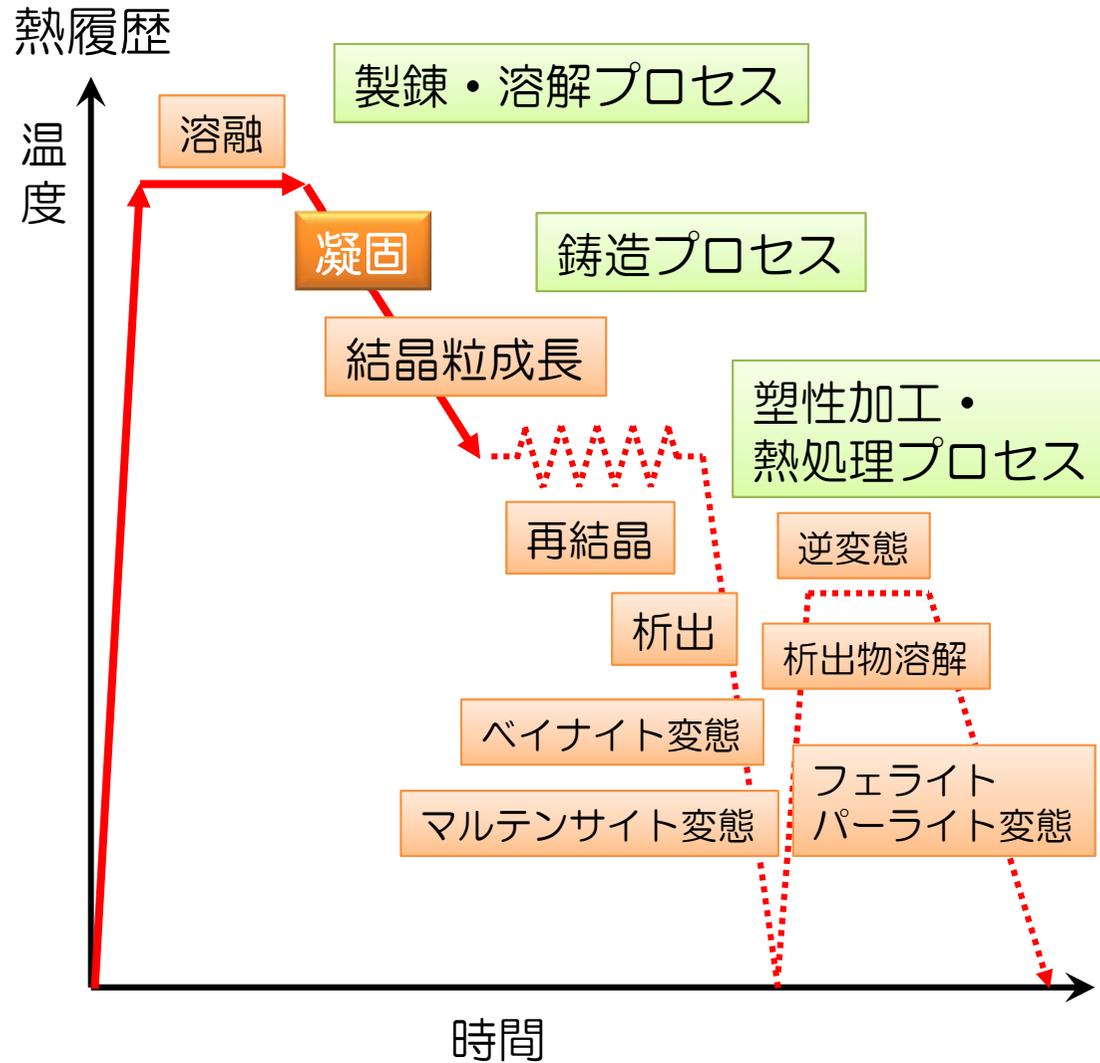
転位セル構造(銅合金)



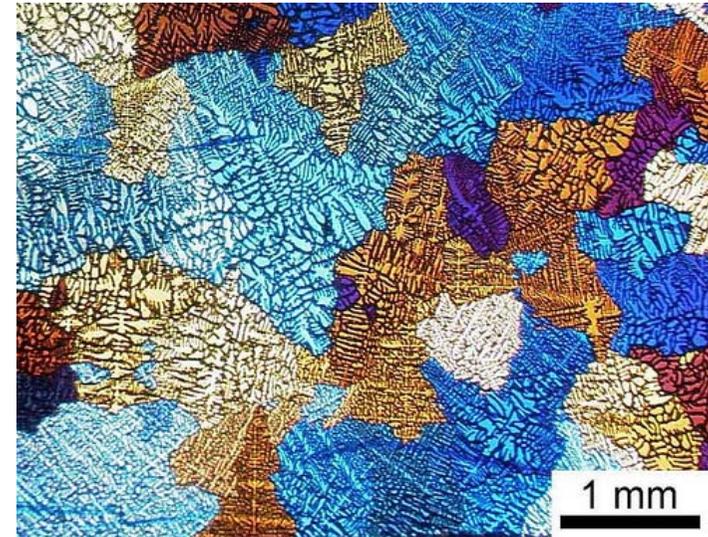
材料特性・性能

結晶粒微細化強化、加工硬化、析出強化、複合強化

実用金属材料の製造プロセス



凝固組織 (Al合金)



<http://www.doitpoms.ac.uk/>

- 合金凝固は直接観察できない
- マルチ・フィジックス
(流動、溶質変化、温度変化)
- 形態が複雑

デンドライト成長の物理

雪の結晶



<http://labaq.com>

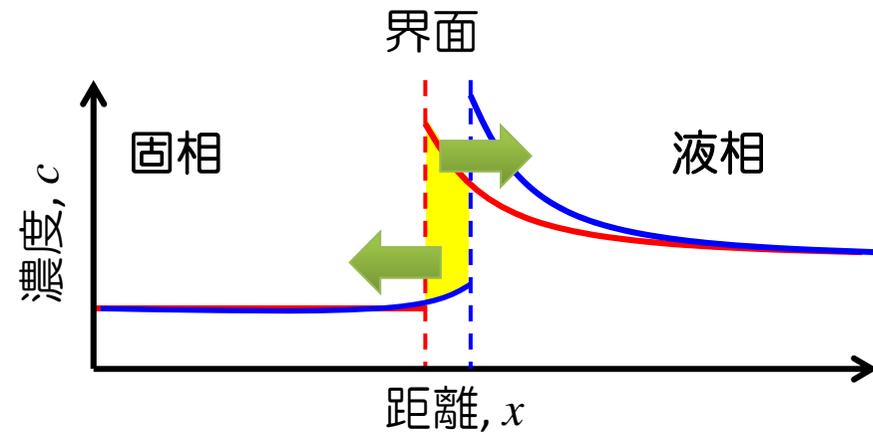
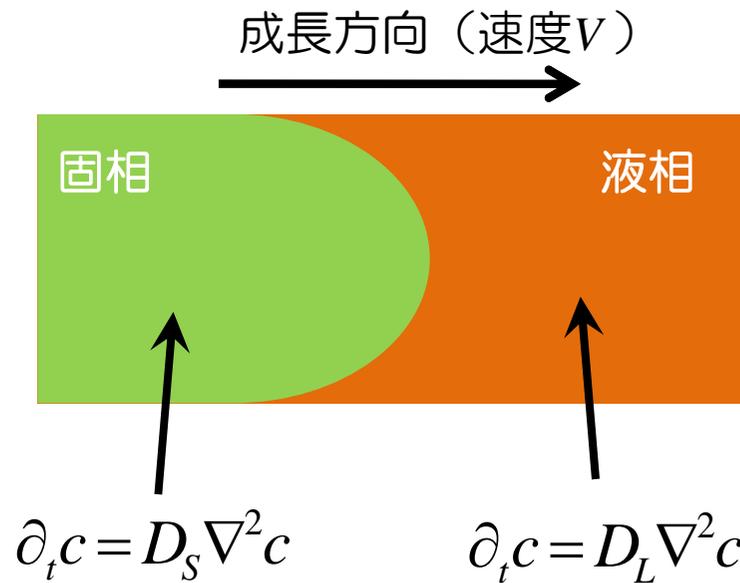
デンドライト
(樹枝状の結晶)

昇華（気体→固体）における潜熱の発生

結晶成長における優先成長方位の存在
(表面エネルギー・表面移動度の異方性)

デンドライト成長の物理法則

二元系の凝固



$$(c_L^* - c_S^*) \cdot V = J_L - J_S$$

- ① バルク中の拡散 (熱・溶質) ② 界面移動に伴う保存則 (熱・溶質)

$$\Delta F_{driv} = -\sigma H - \alpha^{-1} V$$

③ Gibbs-Thomson効果

ΔF_{driv} : 駆動力
 σ : 界面エネルギー
 H : 曲率
 α : 界面移動度

自由境界問題

- ① バルク中の拡散
- ② 界面移動に伴う保存則
- ③ Gibbs-Thomson効果

拡散相変態の理論：

Zenerの界面移動速度論、オストワルド成長のLSW理論、
共晶・共析変態の速度式 など

凝固組織の理論：

Ivantsovの解、組成的過冷却理論、Mullins-Sekerkaの摂動論
KGTデンドライト成長理論、Kurz-Fisherデンドライト一次
アーム理論、Clyne-Kurzのミクロ偏析モデル、など

粒成長の理論（③のみ）：

曲率駆動成長理論(von Neumann-Mullins則)、
Hillertの粒成長理論、Zenerのピン止め理論 など

フェーズフィールド法

Dynamics of Interfaces
in Systems of Reaction Diffusion

広島大学理学部

小林 亮

数理解析研究所講究録
第 614 卷 1987 年 39-54



(図 2 3)

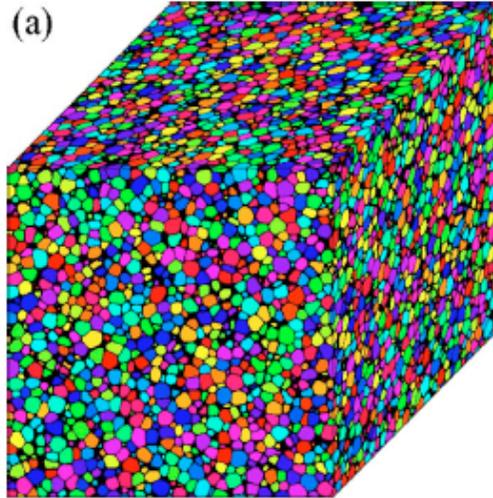


(図 2 4)

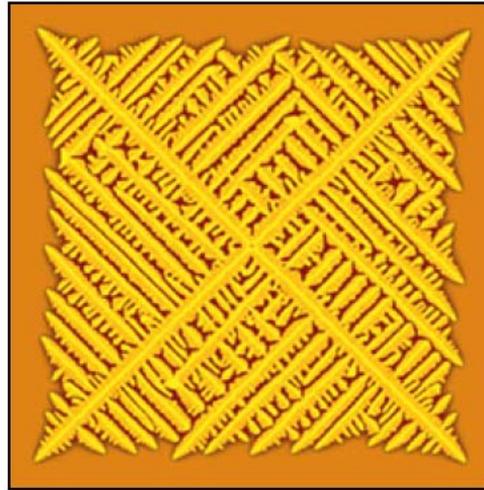
(図 2 3)(図 2 4)は下辺中央に核生成を起こさせて後、断熱条件下で計算したものである。

フェーズフィールド法

粒成長

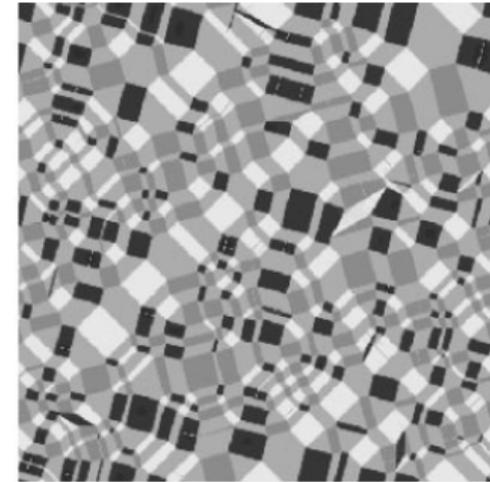


デンドライト

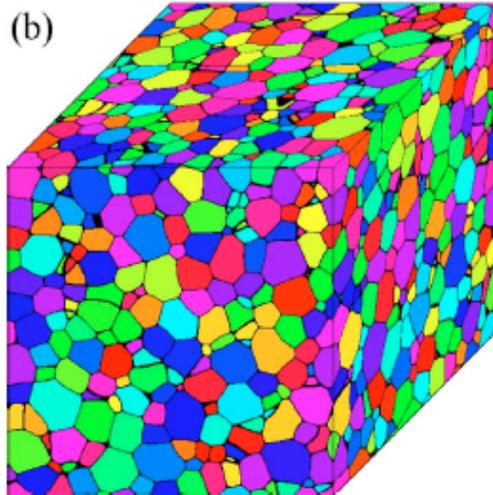


L. Granasy, Nature Mater (2003)

H-O転移



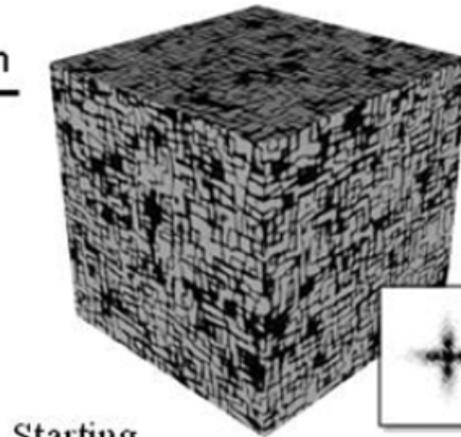
YH Wen, Acta Mater (2000)



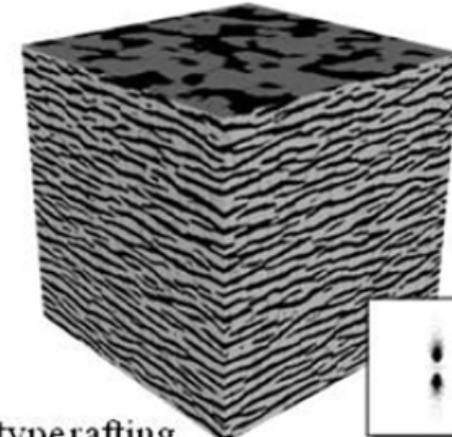
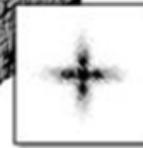
S.G. Kim, PRE (2006)

Ni基 γ/γ' 組織

2 μ m



Starting
microstructure



N-typing rafting
under tension



I. Steinbach, MSMSE (2009)

ARTICLE OPEN

A phase field model for snow crystal growth in three dimensions

Gilles Demange¹, Helena Zapolsky¹, Renaud Patte¹ and Marc Brunel²



1 - stellar dendrite



2 - fern dendrite



11 - needle



7 - double plate



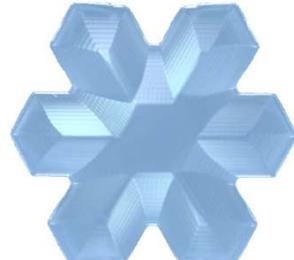
8 - sectored plate



14 - capped col. a



3 - dendrite plate



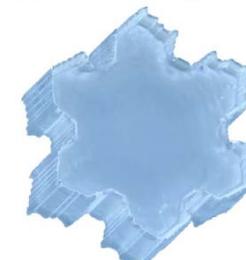
4 - stellar plate



12 needles cluster



9 - solid plate



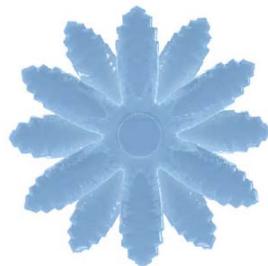
10 - scrolls on plate



15 - capped col. b



5 - simple star*



6 - 12-star*



13 - hollow prism

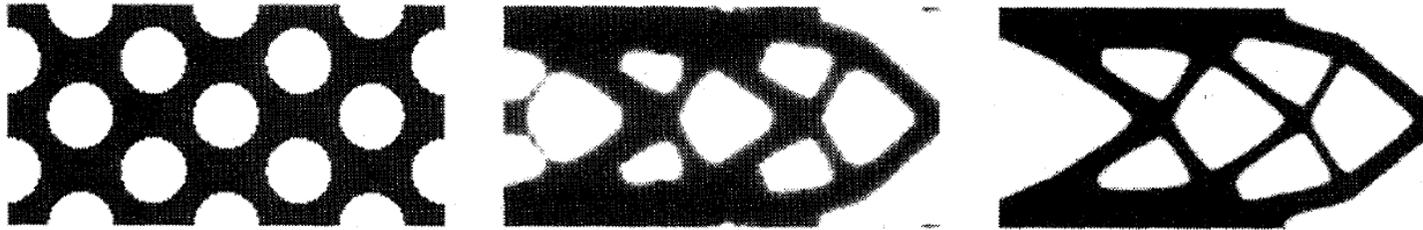
$$A(n)^2 \partial_t \phi = -f'(\phi) + \lambda B(n) g'(\phi) u + \frac{1}{2} \nabla_\Gamma \cdot \left(|\nabla \phi|^2 \frac{\partial [A(n)^2]}{\partial \nabla \phi} + A(n)^2 \nabla_\Gamma \phi \right)$$

$$\partial_t u = \tilde{D} \nabla_\Gamma \cdot (q(\phi) \nabla_\Gamma u) - \frac{L_{\text{sat}}}{2} B(n) \partial_t \phi,$$

フェーズフィールド法の実用例

構造体のトポロジー最適化

竹澤ら, 日本機械学会論文集(A編), 76 (2010), 1



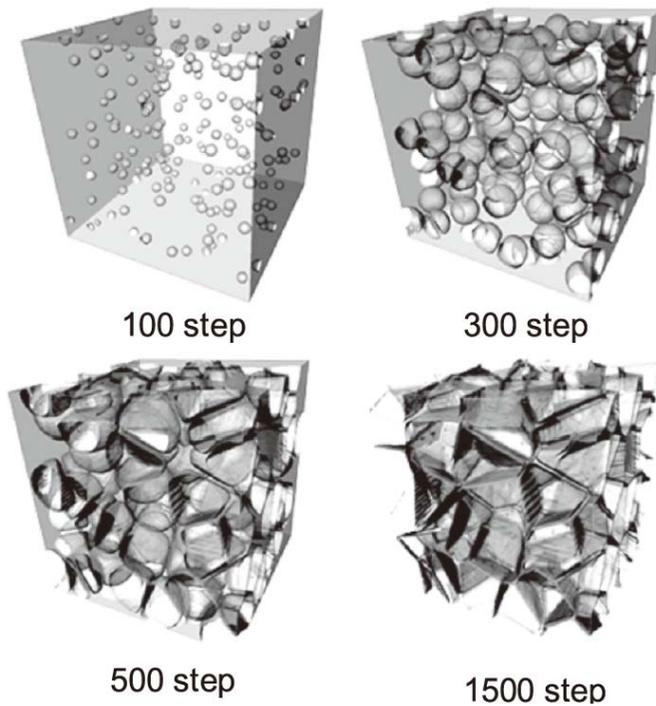
(a) An initial shape

(b) Iteration 10

(c) Iteration 100

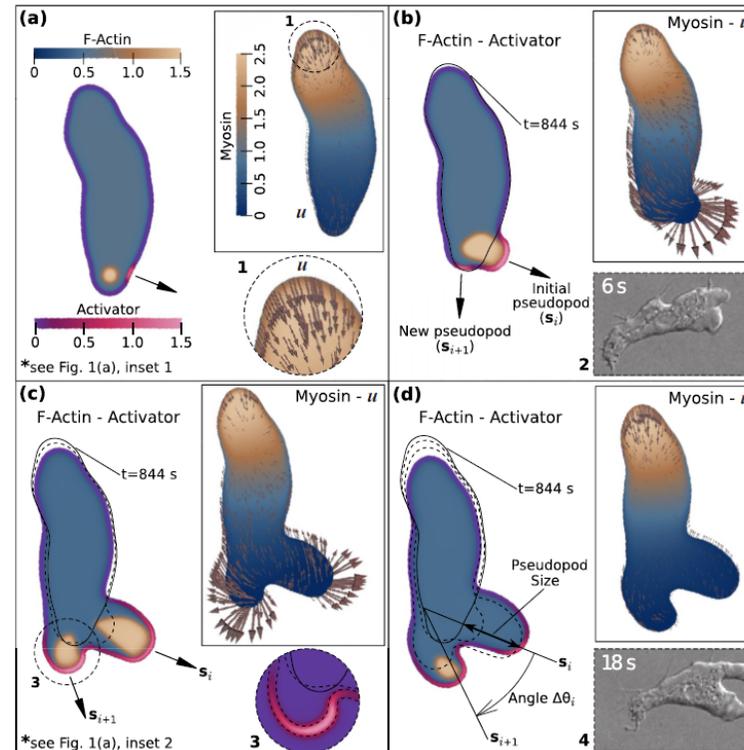
肺胞の成長過程

安井真人ら, 生体医工学, 49 (2011), 250



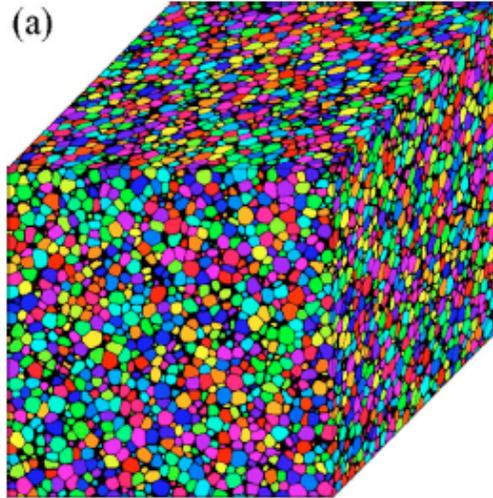
アメーバの運動

A. Moure, Phys. Rev. E, 94 (2016), 042423.

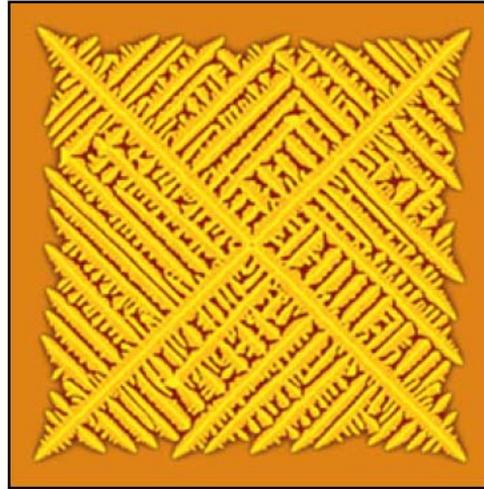


フェーズフィールド法

粒成長

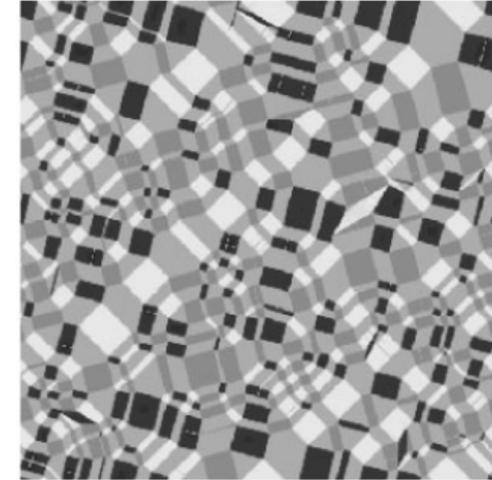


デンドライト

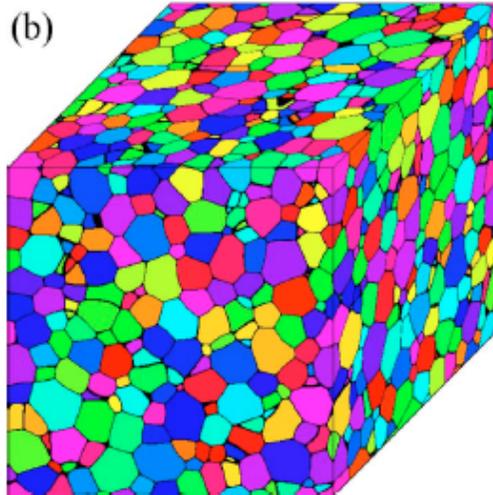


L. Granasy, Nature Mater (2003)

H-O転移



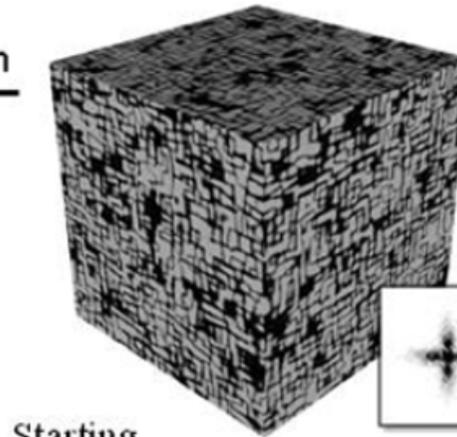
YH Wen, Acta Mater (2000)



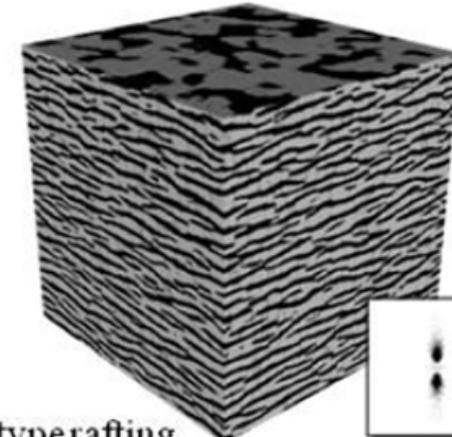
S.G. Kim, PRE (2006)

Ni基 γ/γ' 組織

2 μ m



Starting microstructure



N-typing rafting under tension

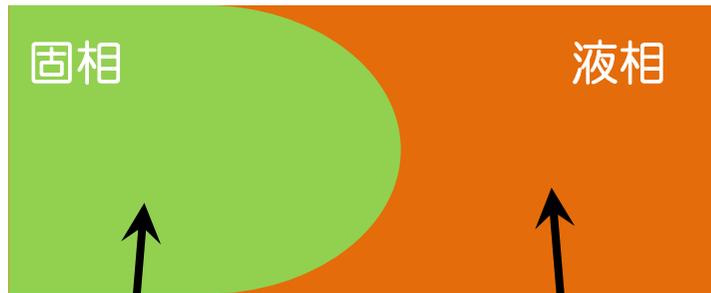


I. Steinbach, MSMSE (2009)

デンドライト成長の物理法則

二元系の凝固

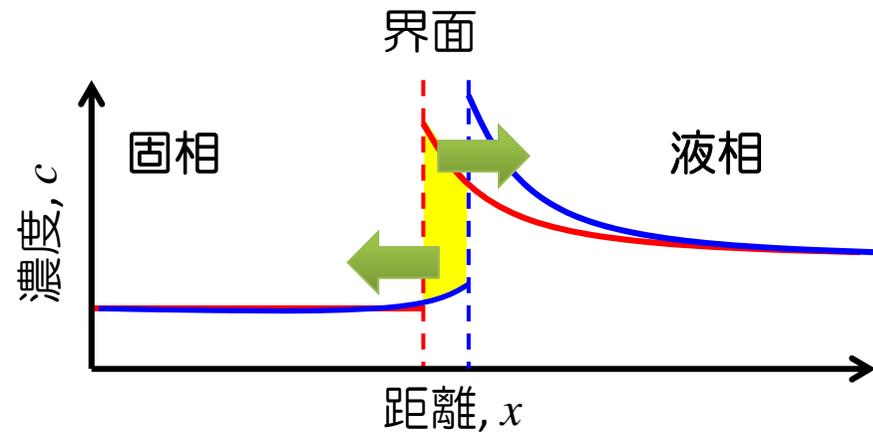
成長方向 (速度 v)



$$\partial_t c = D_S \nabla^2 c$$

$$\partial_t c = D_L \nabla^2 c$$

① バルク中の拡散 (熱・溶質)



$$(c_L^* - c_S^*) \cdot V = J_L - J_S$$

② 界面移動に伴う溶質保存則

$$\Delta F_{driv} = -\sigma H - \alpha^{-1} V$$

③ Gibbs-Thomson効果

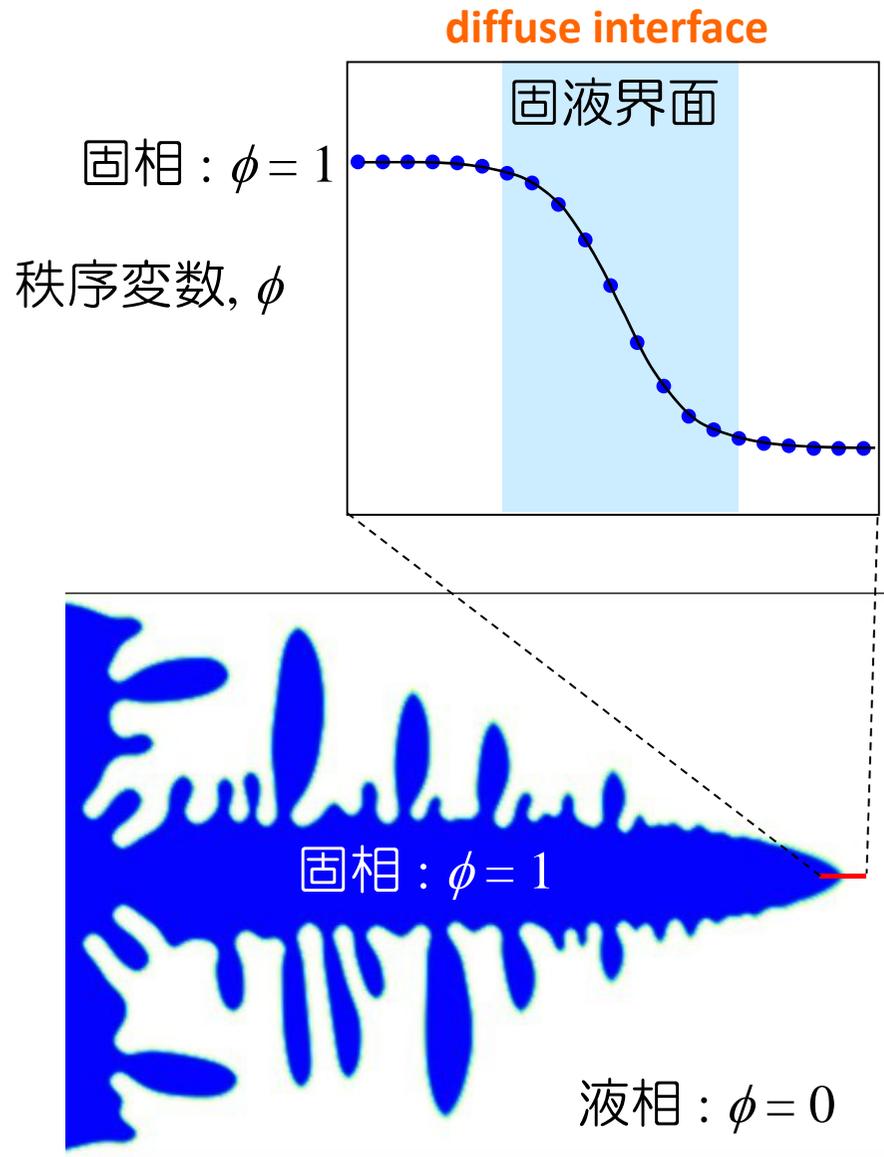
ΔF_{driv} : 駆動力

σ : 界面エネルギー

H : 曲率

α : 界面移動度

フェーズフィールド法



$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \varepsilon^2 \nabla^2 \phi + f(\phi, c)$$

Gibbs-Thomson効果

濃度 c :
$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla M(\phi) \nabla \mu(\phi, c)$$

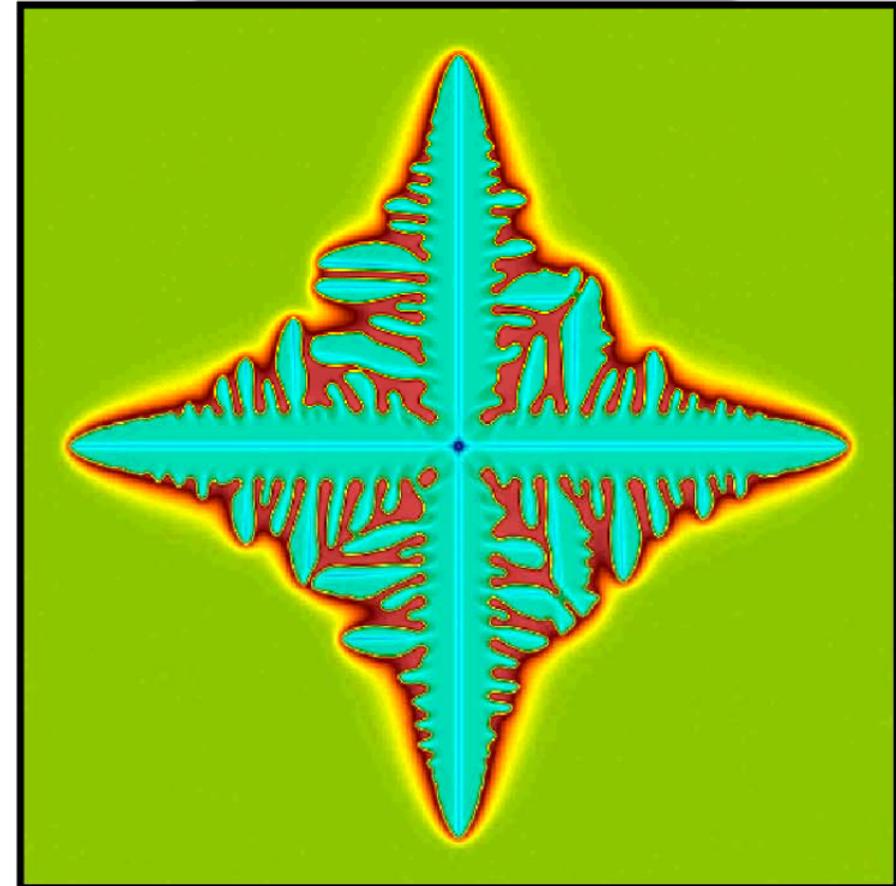
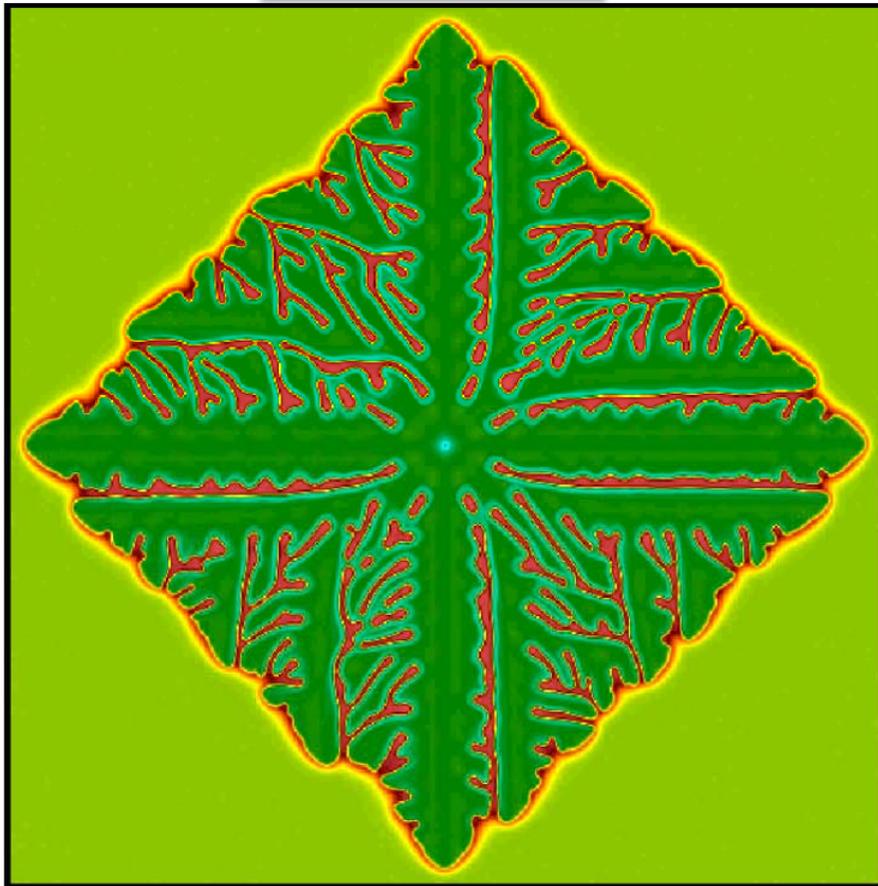
バルク中の拡散
界面移動における保存則

温度 T :
$$\frac{\partial T}{\partial t} = \dots$$
 速度 v :
$$\frac{\partial v}{\partial t} = \dots$$

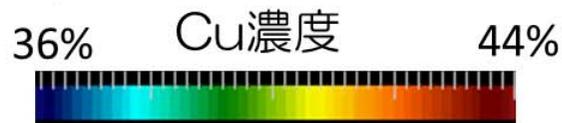
Ni-40%Cu合金 at 1577 K

PFモデル

定量的PFモデル



10 μm



- ① バルク中の拡散
- ② 界面移動に伴う溶質保存則 + ~~非物理的效果~~
- ③ Gibbs-Thomson効果 + ~~非物理的效果~~

Quantitative PFM

- **Single-phase solidification in pure substances ($D_s = D_L$)**

A. Karma and W-J. Rappel: Phys. Rev. E, **53**(1996), R3017.

- **Single-phase solidification in binary alloys ($D_s = 0$)**

A. Karma: Phys. Rev. Lett., **87**(2001), 115701.

D_L : diffusivity in liquid

D_s : diffusivity in solid

- **Single-phase solidification in binary alloys ($D_s \neq 0$)**

M. Ohno and K. Matsuura: Phys. Rev. E, **79**(2009), 031603.

- **Two-phase solidification in binary alloys ($D_s \neq 0$)**

M. Ohno and K. Matsuura: Acta Mater., **58** (2010), 5749.

- **Single-phase solidification in multicomponent alloys ($D_s \neq 0$)**

M. Ohno: Phys. Rev. E, **86**(2012), 051603.

- **Variational formulation of solutal model for binary alloys**

M. Ohno, T. Takaki and Y. Shibuta : Phys. Rev. E, **93** (2016), 012802.

- **Variational formulation of thermo-solutal model for multicomponent alloys**

M. Ohno, T. Takaki and Y. Shibuta : Phys. Rev. E, **96** (2017), 033311.

定量的フェーズフィールド・モデル

- フェーズフィールド方程式 ($\phi = +1$: 固相、 $\phi = -1$: 液相)

$$\tau \partial_t \phi = \nabla \left[W(\mathbf{n})^2 \nabla \phi \right] + \sum_i \nabla_i \left[|\nabla \phi|^2 W(\mathbf{n}) \frac{\partial W(\mathbf{n})}{\partial (\nabla_i \phi)} \right] - f'_{dw}(\phi) - g'(\phi) \lambda \Delta F_{driv}$$

- 拡散方程式

$$\partial_t \mathbf{c} = -\nabla (J_c + J_{at} + J_{noise})$$

$$J_c = -\frac{1+\phi}{2} D_s \nabla c_s - \frac{1-\phi}{2} D_l \nabla c_l$$

$$J_{at} = -\frac{W}{2\sqrt{2}} \left(1 - \frac{kD_s}{D_l} \right) (c_l - c_s) \partial_i \phi \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|}$$

$$\langle J_{noise}(r, t) J_{noise}(r', t') \rangle = A_m D(\phi) \delta(r - r') \delta(t - t')$$

- 熱伝導方程式

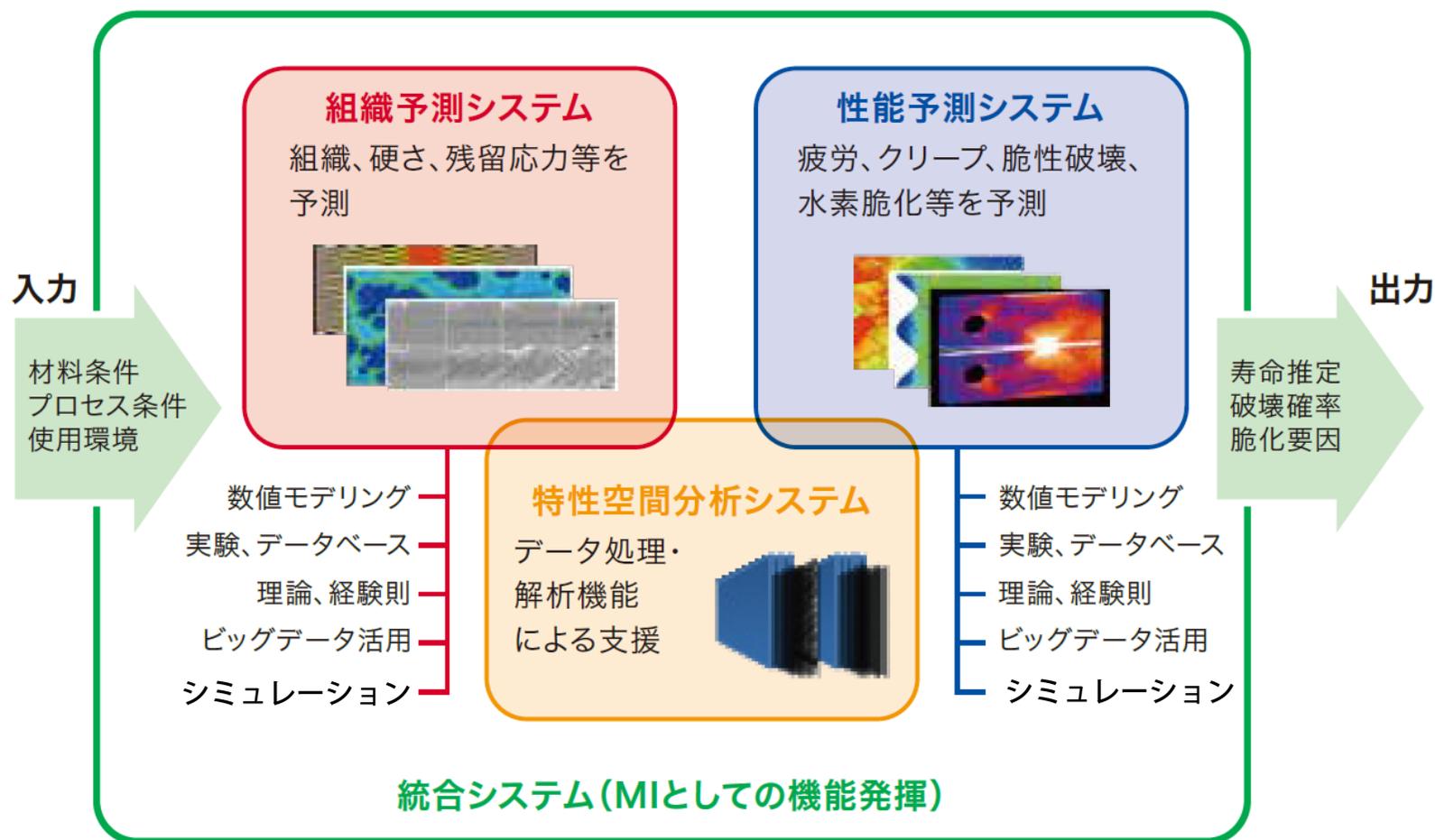
- ナビエ・ストークス方程式

τ^1 : phase-field 移動度
 $W(\mathbf{n})$: 界面幅
 \mathbf{n} : 界面法線ベクトル
 f_{dw} : ダブルウェルポテンシャル
 $g(\phi)$: ϕ の単調増加関数
 λ : カップリング定数
 $c_{j,i}$: j 相における i 原子濃度
 $D_{j,i}$: j 相における i 原子の拡散係数
 A_m : 熱揺らぎの振幅
 k : 分配係数
 T_0 : 参照温度 (固相線温度)
 G : 温度勾配
 y : y 座標
 V_p : 引抜速度

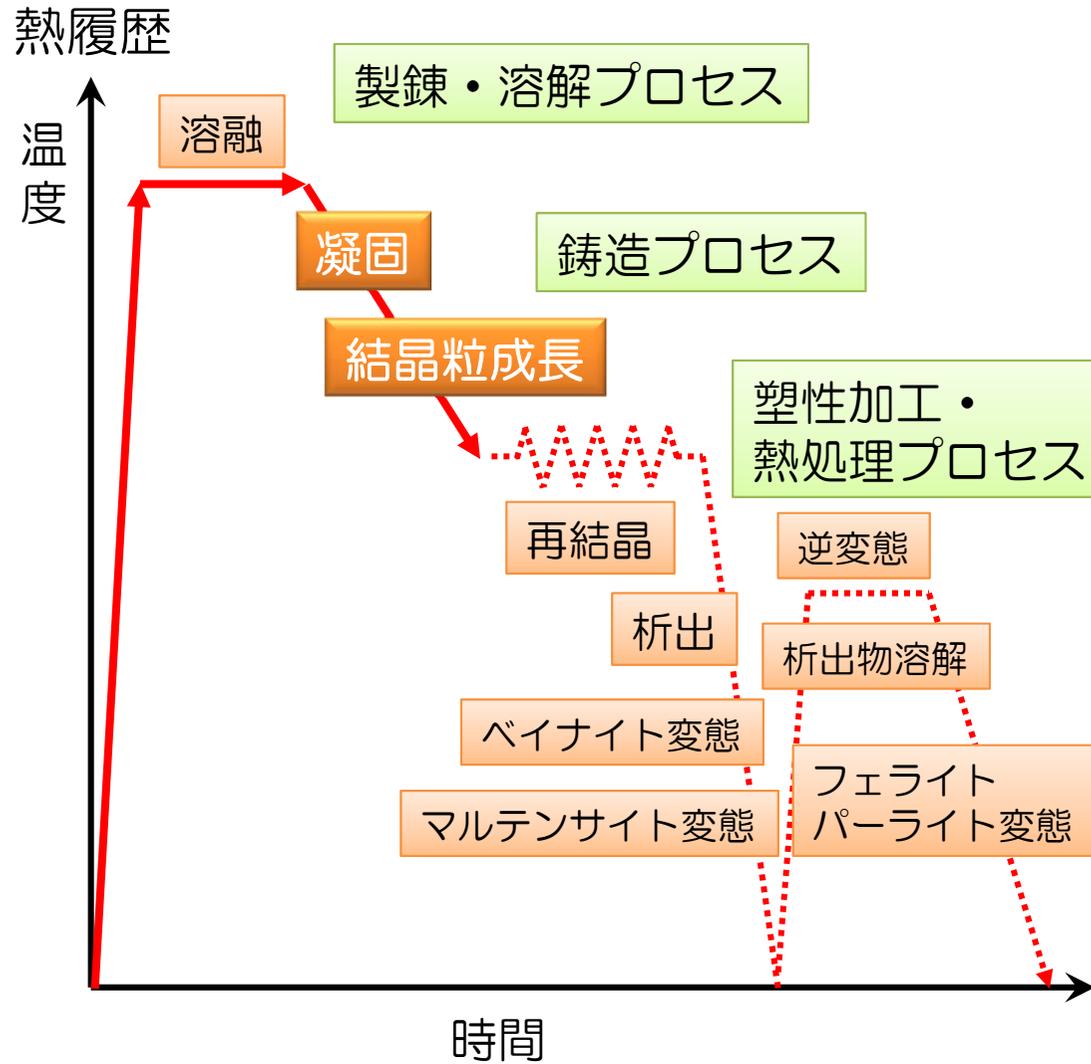
SIP革新的構造材料「マテリアルズインテグレーション(MI)」

材料開発時間を一桁短縮し、構造材料開発を効率化

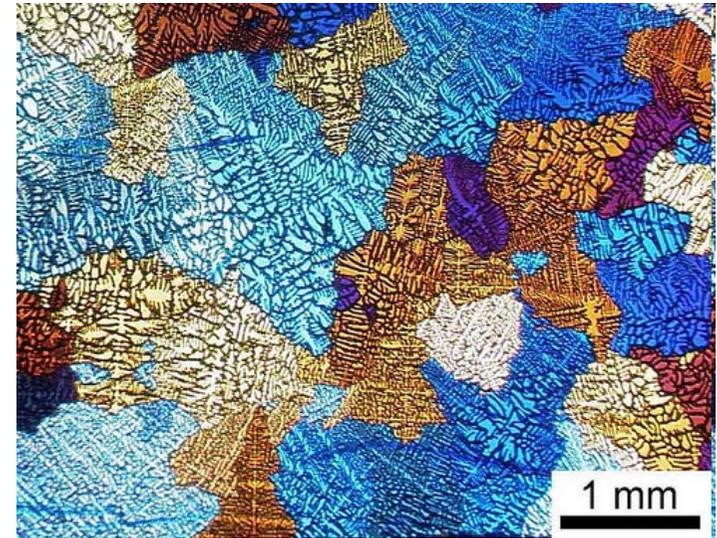
金属材料のMIシステム(高強度鋼の溶接継ぎ手性能を例題として先行実施)



実用金属材料の製造プロセス



凝固組織 (Al合金)



<http://www.doitpoms.ac.uk/>

多結晶粒組織



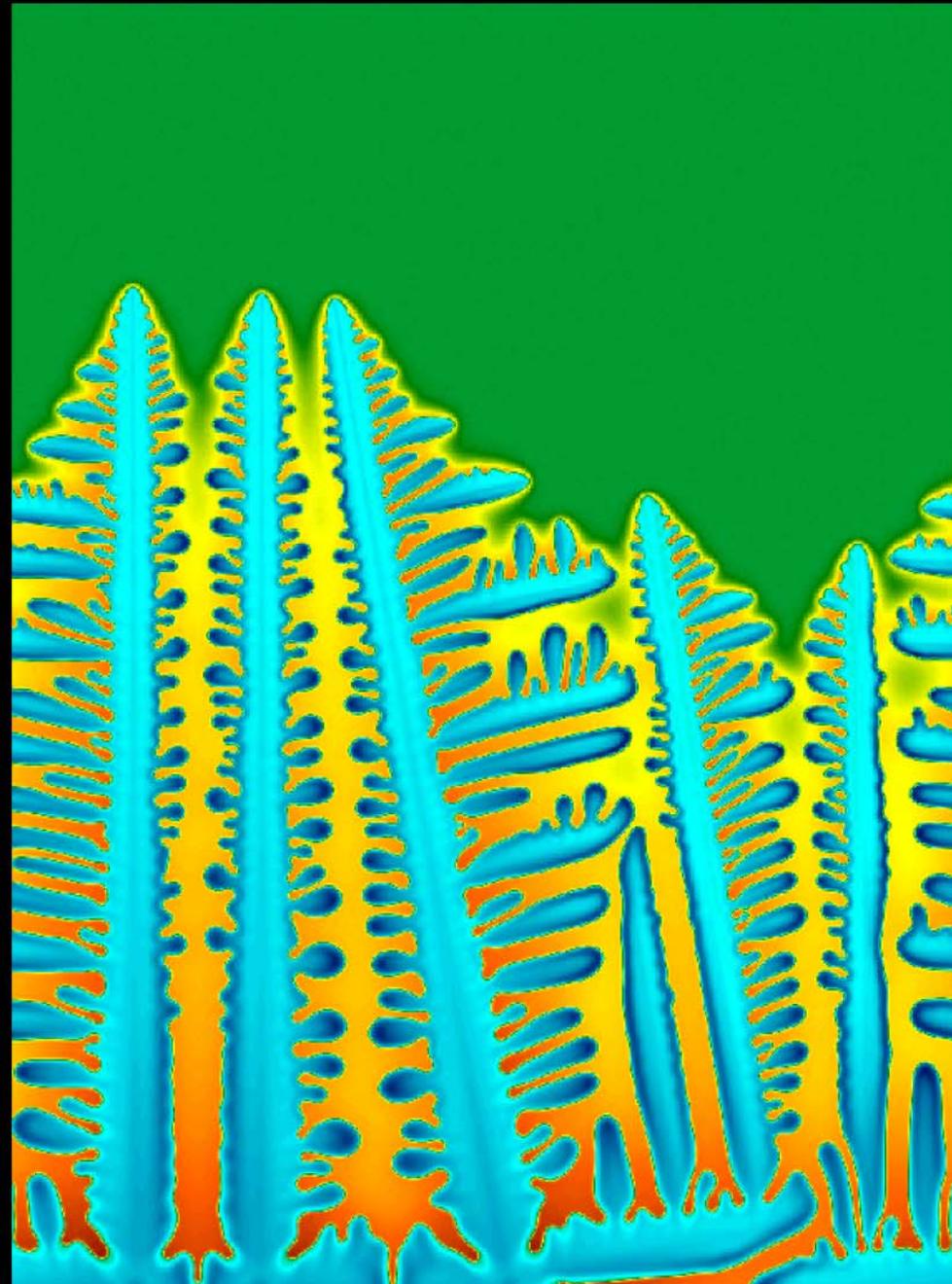
<https://www.leica-microsystems.com/science-lab/>

一方向凝固の凝固組織 (fusion line近傍の組織)

鋼種 : Fe-0.065mass%C
-0.7mass%Mn合金

温度勾配 : 5000 K/m

冷却速度 : 20 K/s



100 μm

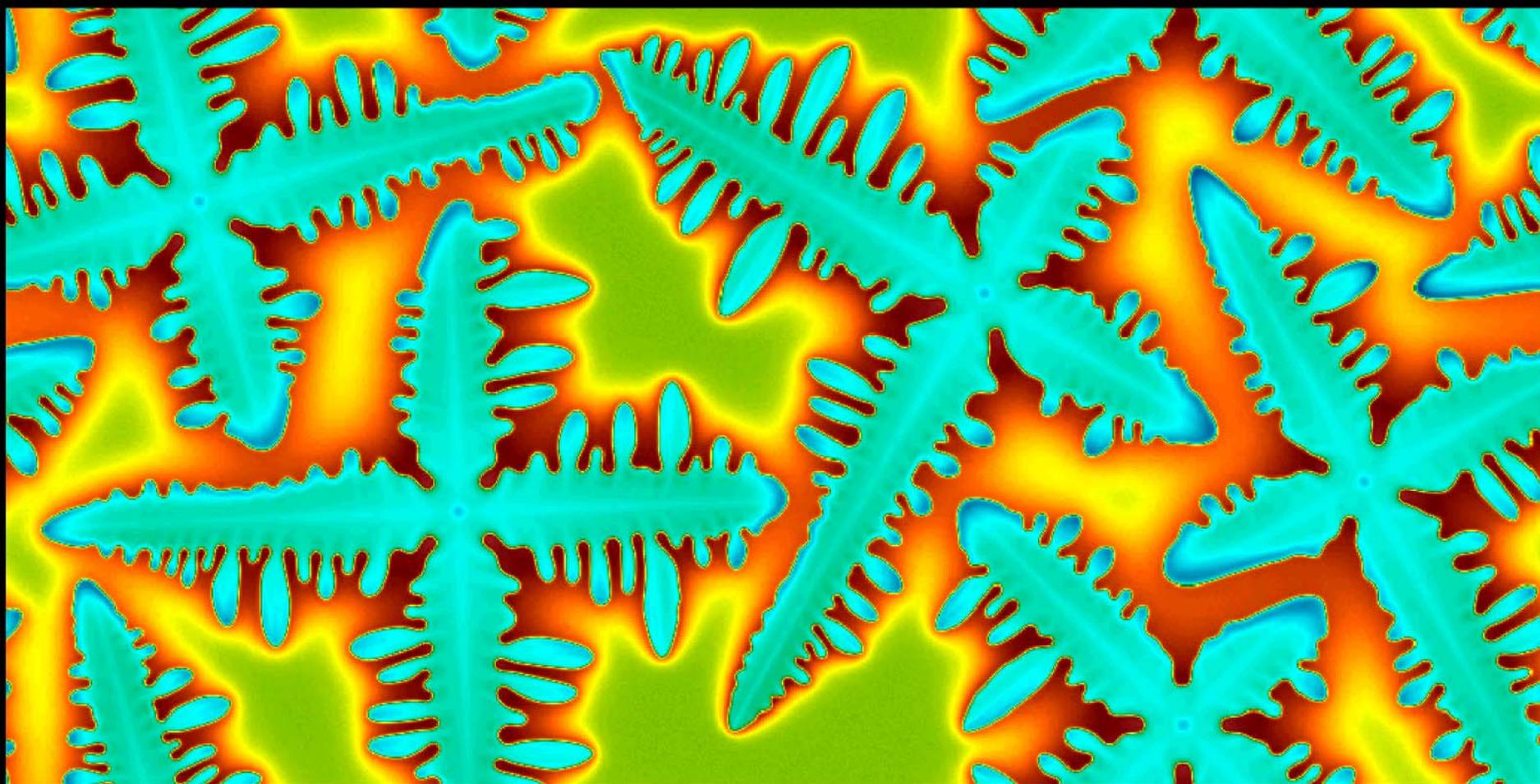


連続冷却中の凝固組織（溶融池中心部）

鋼種 : Fe-0.065mass%C-0.7mass%Mn合金

冷却速度 : 20K/s

50 μm



0.5mass%

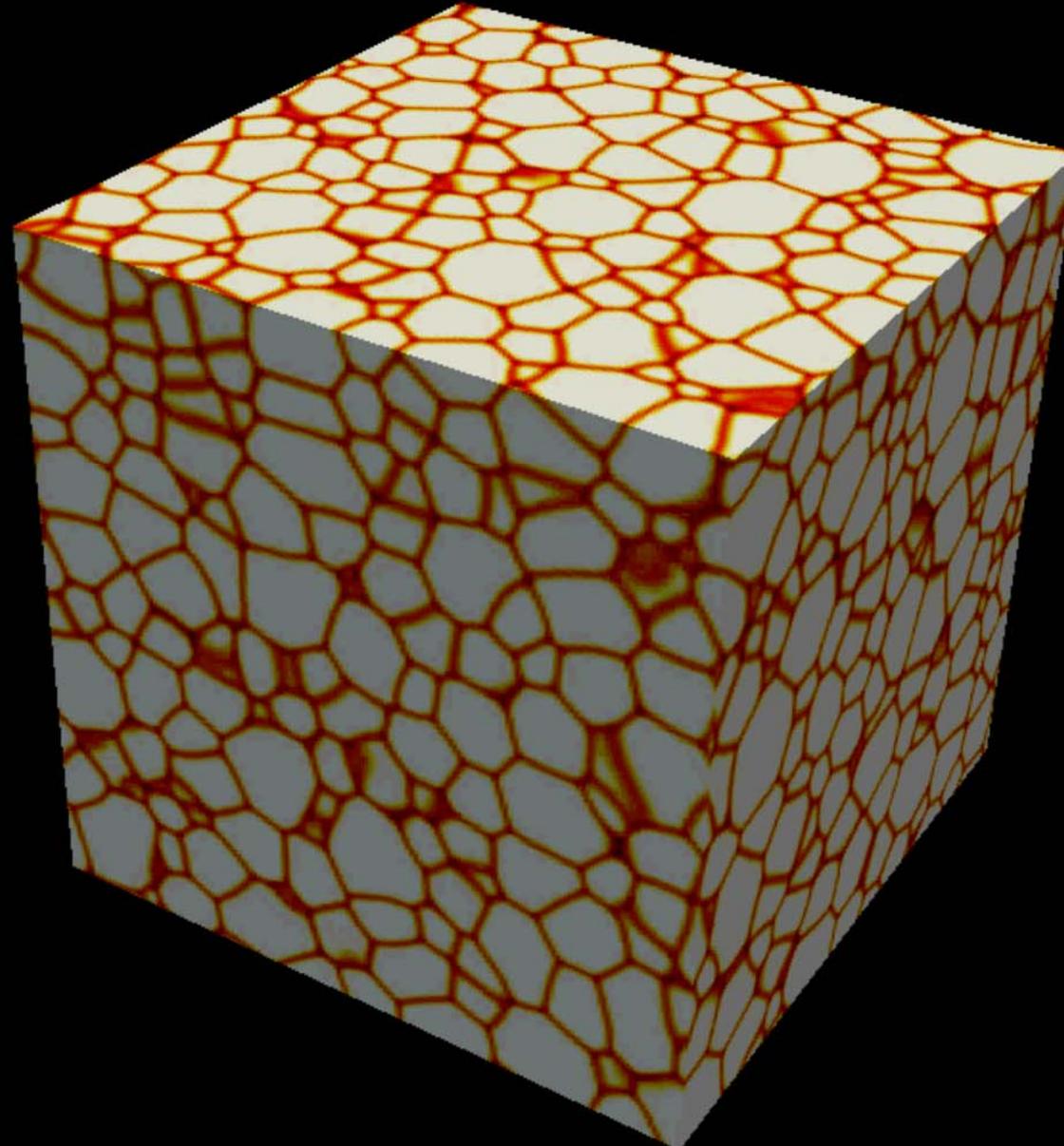
Mn濃度

0.9mass%

オーステナイト粒の等温成長

鋼種 : Fe-0.2mass%C-0.8mass%Mn, システムサイズ : 1mm x 1mm x 1mm (3D)

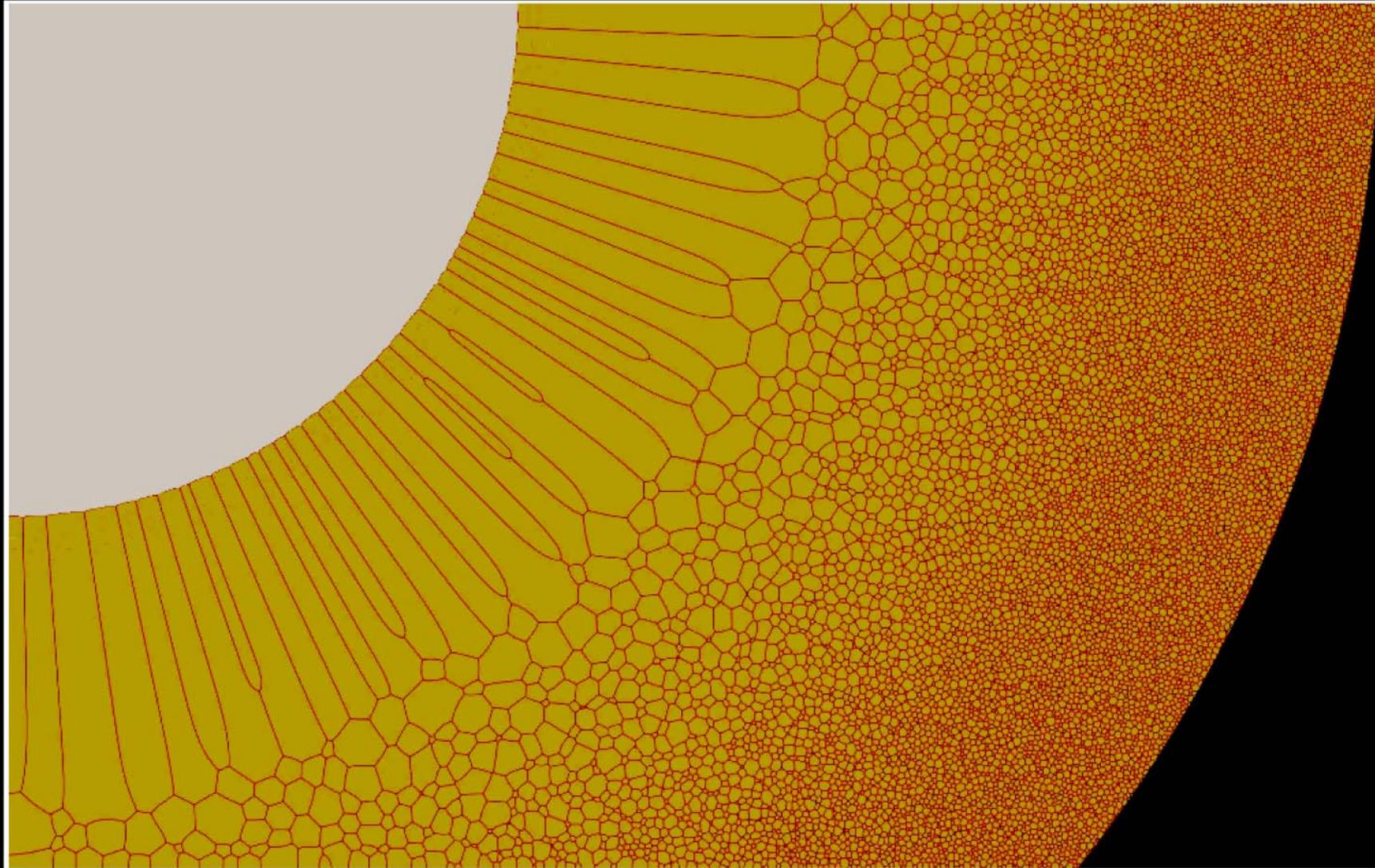
保持温度 : $T = 1700$ K, 保持時間 : 約1s



炭素鋼の溶接シミュレーション

鋼種: Fe-0.2mass%-0.8massMn, 入熱量: 8×10^5 J/m, システムサイズ: 10mm x 5mm (2D)

白色領域: 溶融部、黄色領域: オーステナイト粒組織、黒色領域: 低温組織



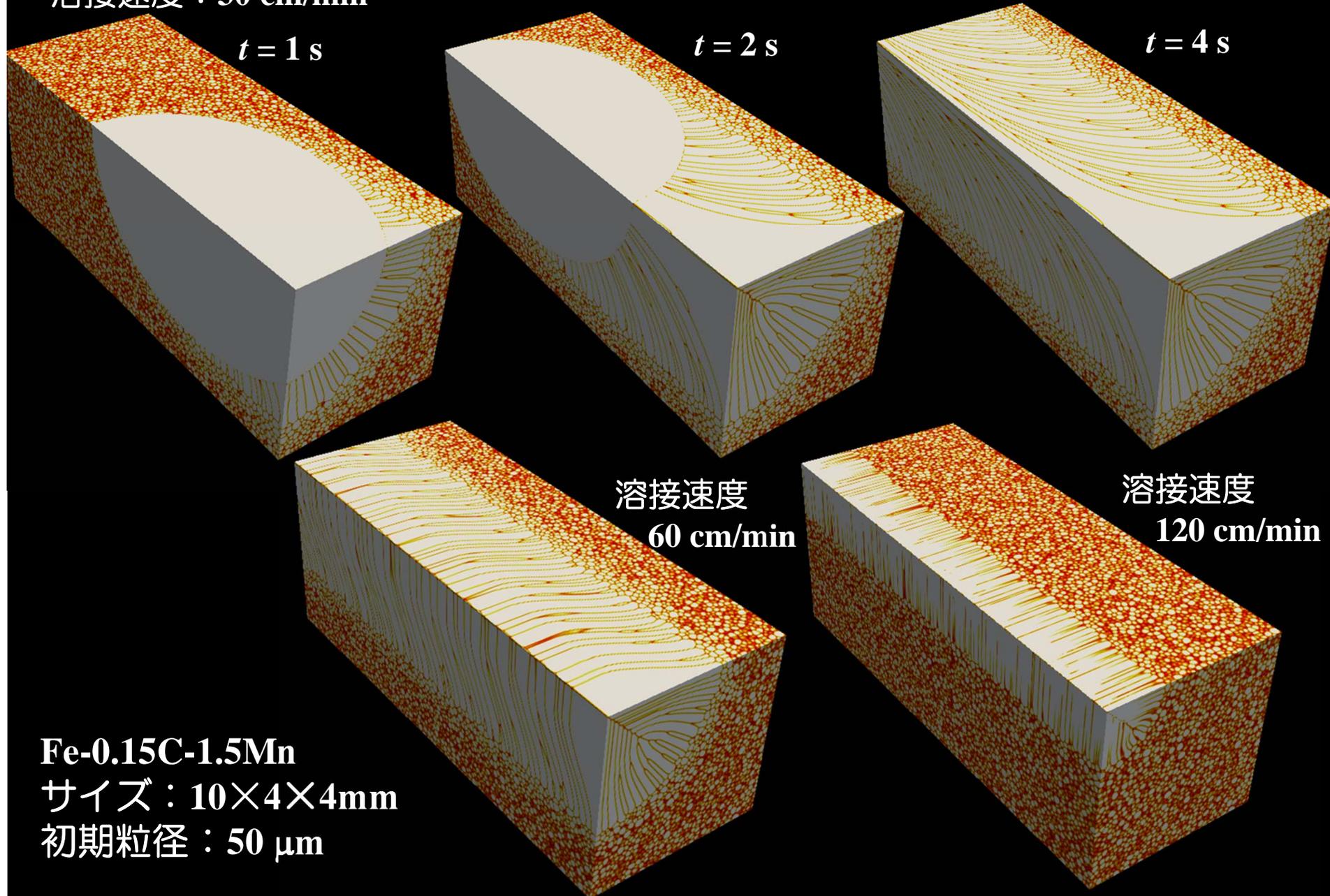
熱影響部の γ 粒成長 (3D)

溶接速度 : 30 cm/min

$t = 1 \text{ s}$

$t = 2 \text{ s}$

$t = 4 \text{ s}$



溶接速度
60 cm/min

溶接速度
120 cm/min

Fe-0.15C-1.5Mn

サイズ : 10×4×4mm

初期粒径 : 50 μm

凝固組織の高精度・超大規模計算プロジェクト

HPCI戦略プログラム2・CMSI
ポスト「京」重点課題(7)・CDMSI

北海道大学

京都工芸繊維大学

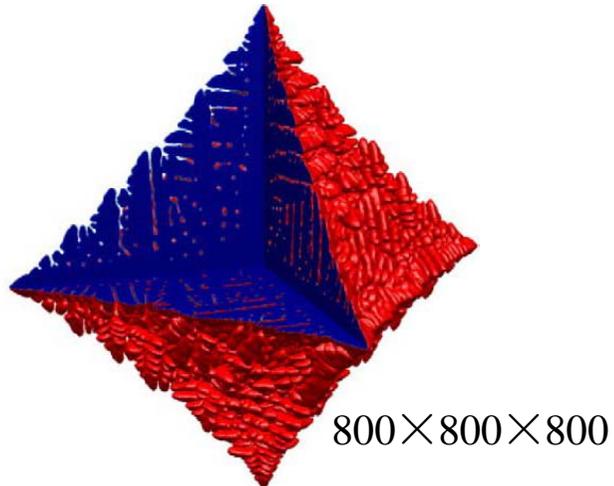
東京大学

大野 宗一

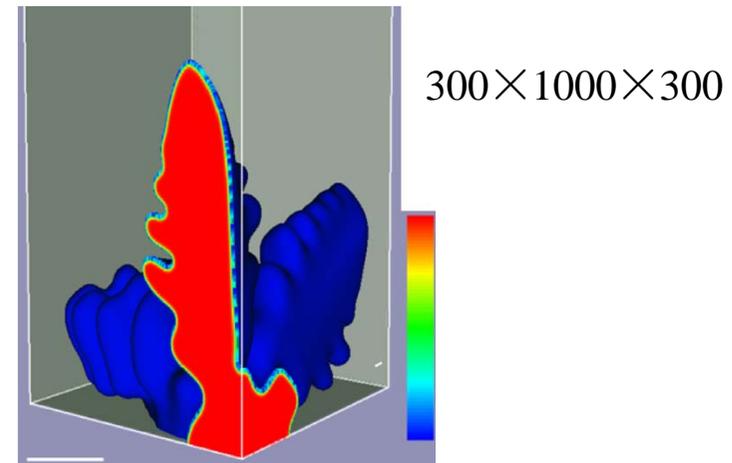
高木 知弘

澁田 靖

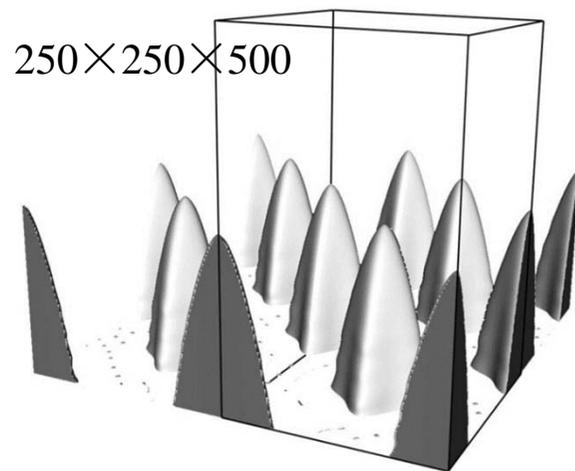
三次元フェーズフィールド・シミュレーション



Mater. Sci. Eng., A, 413–414 (2005) 412–417.

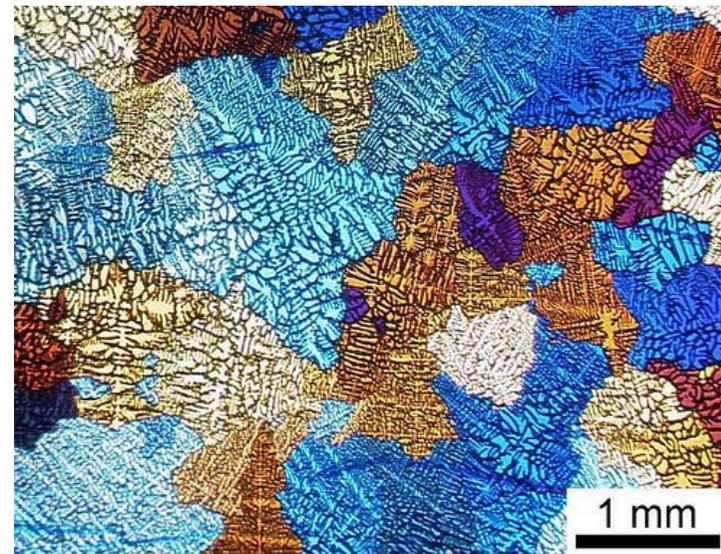


Acta Mater., 59 (2011) 5074–5084



Acta Mater., 56 (2008) 4965–4971

デンドライト集団間の競合



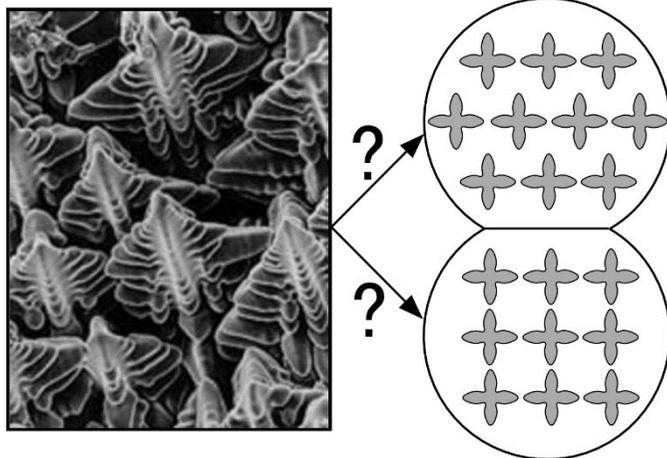
凝固組織形成における未解明の現象

- デンドライト競合成長における集団淘汰のルール
- デンドライト集団配列の規則性
- 対流内でのデンドライト集団成長
- デンドライトフラグメンテーション
- ミクロ・マクロ偏析挙動

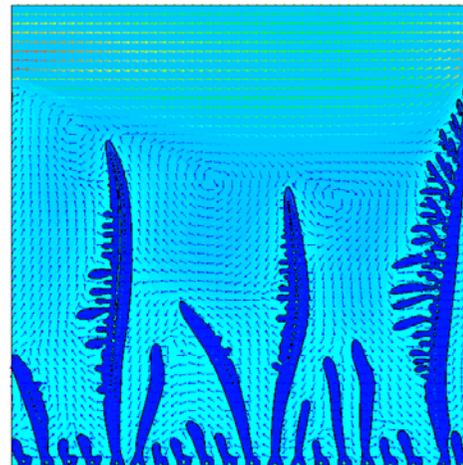
結晶粒の配向性制御、結晶粒サイズの制御、偏析制御

多数のデンドライトの競合成長（超大規模計算）

集団配列の規則性



集団成長における対流



フラグメンテーション

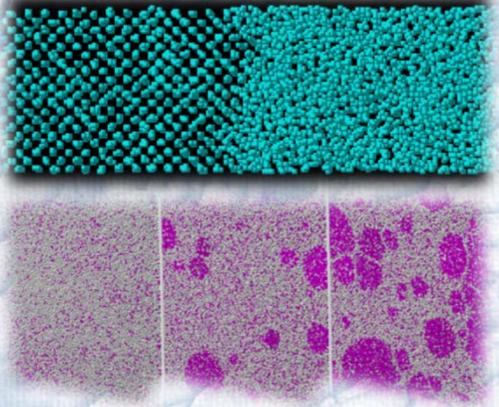


凝固組織の大規模計算プロジェクト



MD

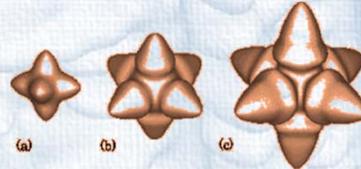
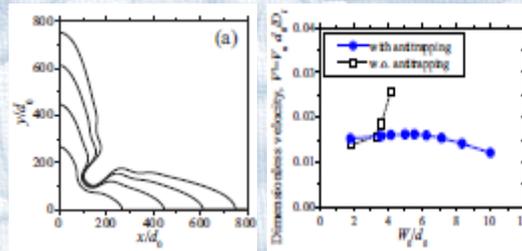
澁田 靖
(東大)



- 固液界面物性
- 界面移動度
- 拡散係数
- 核生成
- 成長ダイナミクス

Q-PFM

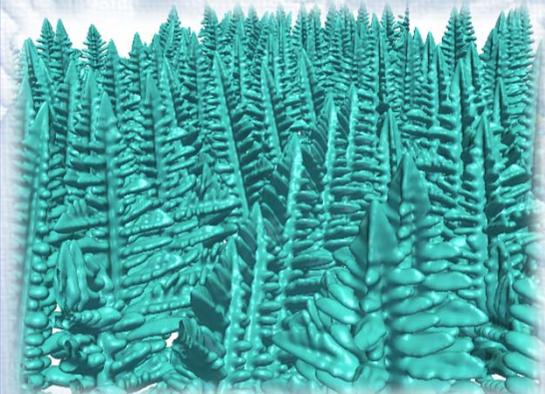
大野 宗一
(北大)



- 多成分系モデル
- 多相系モデル
- 温度場カップリング
- 速度場カップリング
- 界面揺らぎ

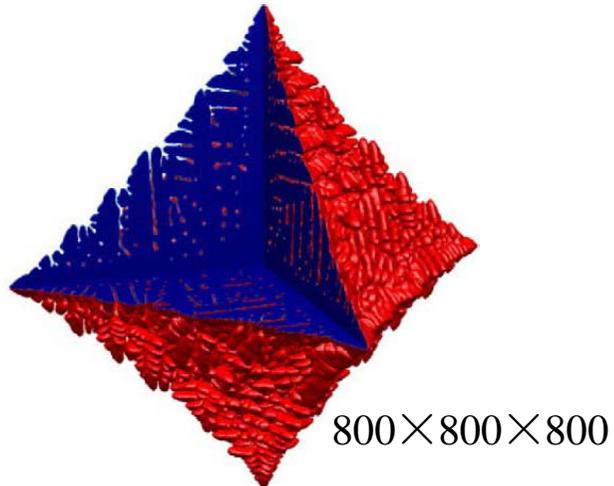
Large-scale PF

高木 知弘
(京工繊大)

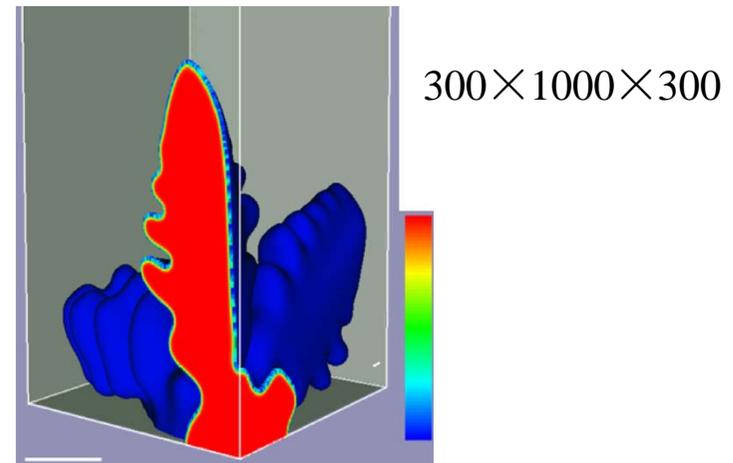


- デンドライト集団の競合成長
- 集団配列の対称性
- 流動効果
- 偏析

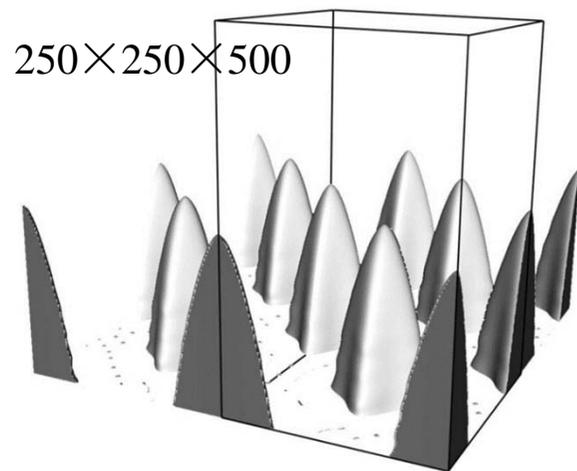
三次元フェーズフィールド・シミュレーション



Mater. Sci. Eng., A, 413–414 (2005) 412–417.

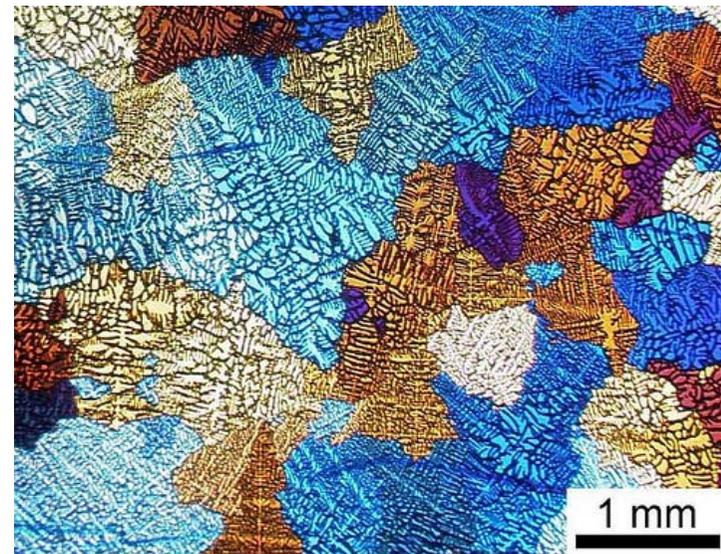


Acta Mater., 59 (2011) 5074–5084



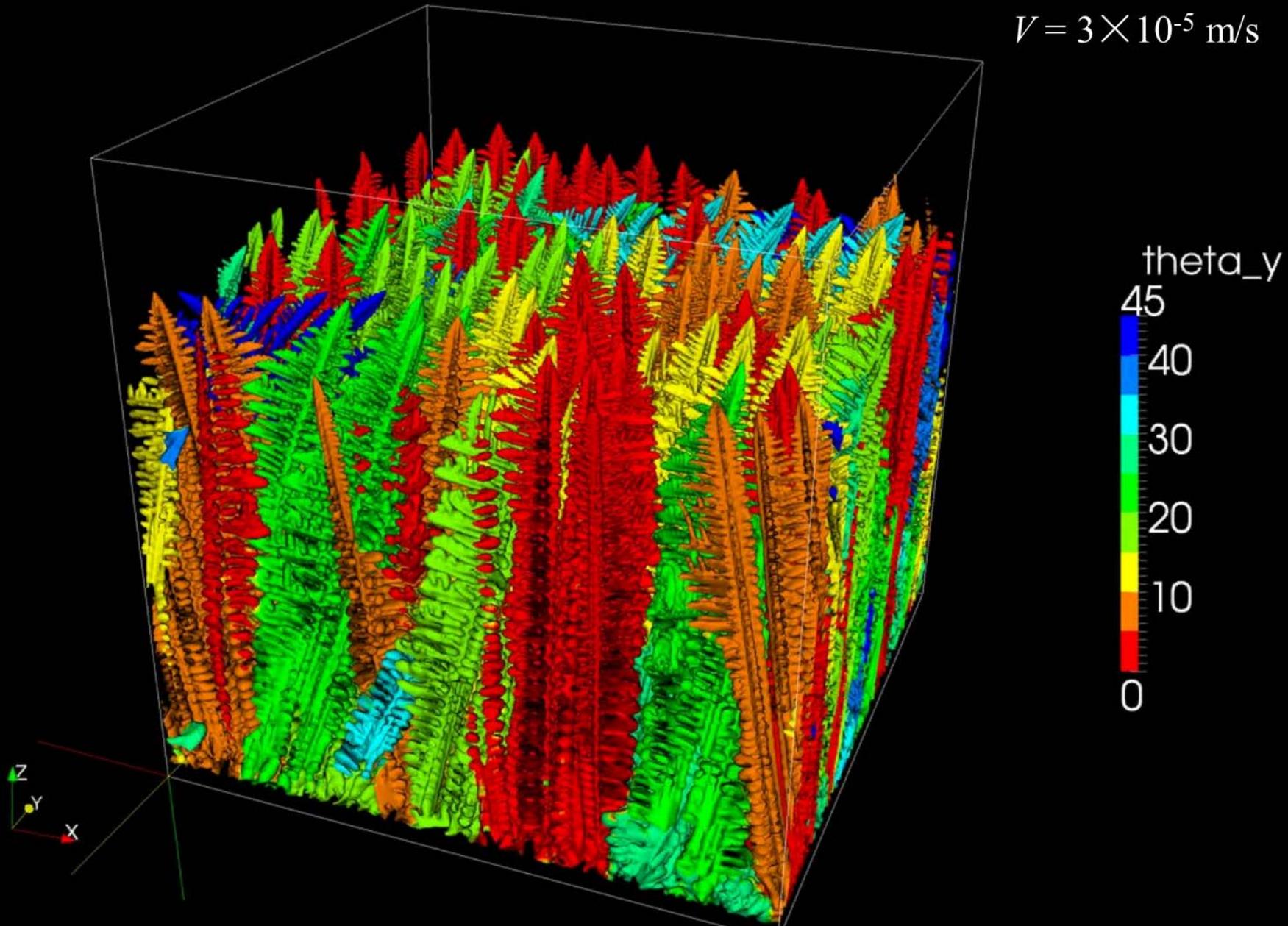
Acta Mater., 56 (2008) 4965–4971

デンドライト集団間の競合



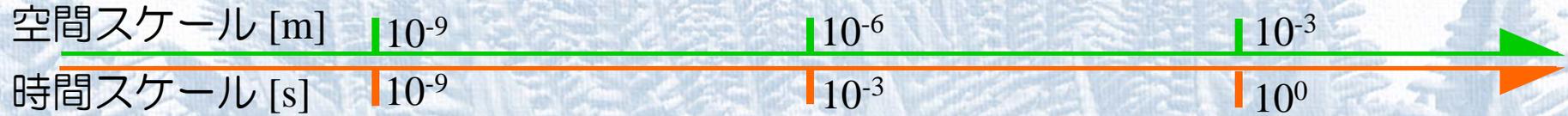
Directional solidification of Al-5mass%Si alloy

$3 \times 3 \times 3 \text{ m}^3$
 $G = 10000 \text{ K/m}$
 $V = 3 \times 10^{-5} \text{ m/s}$



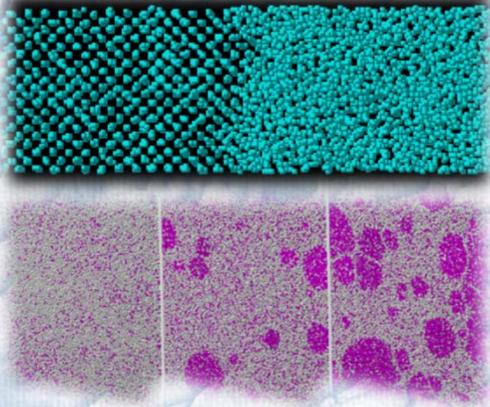
凝固組織の高精度・超大規模計算プロジェクト

HPCI戦略プログラム2・CMSI
 ポスト「京」重点課題(7)・CDMSI



MD

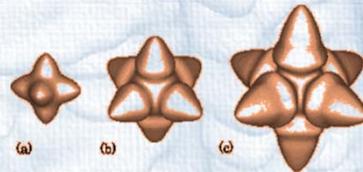
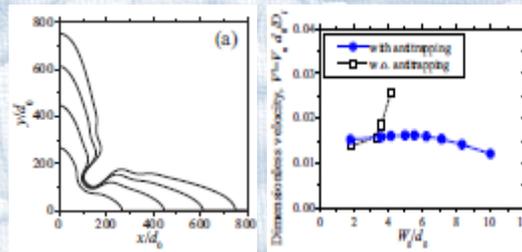
澁田 靖
 (東大)



- 固液界面物性
- 界面移動度
- 拡散係数
- 核生成
- 成長ダイナミクス

Q-PFM

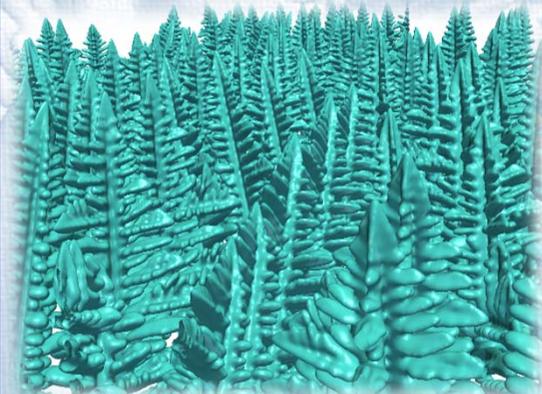
大野 宗一
 (北大)



- 多成分系モデル
- 多相系モデル
- 温度場カップリング
- 速度場カップリング
- 界面揺らぎ

Large-scale PF

高木 知弘
 (京工繊大)



- デンドライト集団の競合成長
- 集団配列の対称性
- 流動効果
- 偏析