The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Phase-Field Study on Solidification Microstructures of Crystalline Materials
Author(s)	Zhu, Chuanqi
Citation	大阪大学, 2023, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/92947
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　　朱　伝奇　　）	
論文題名	Phase-Field Study on Solidification Microstructures of Crystalline Materials （フェーズフィールド法を用いた結晶性材料の凝固組織に関する研究）

結晶性材料の特性は、凝固プロセス中に形成される微細組織に大きく依存する。産業的に重要な多くの材料の凝固における微細組織形成メカニズムを解明し、精緻な制御を可能にすることが求められている。本研究では、フェーズフィールド（Phase-Field: PF）法を使用して、界面移動ならびに界面エネルギーの結晶異方性と溶質分配の協調的な寄与に関連する凝固にともなうパターン形成を、エネルギーの創成・変換・消費に関連する3つの材料を対象にして、ファセット成長、共晶反応、急速凝固といった特徴的凝固過程のモデリング手法を開発した。本論文は、それらの研究成果をまとめたものであり、以下の６つの章で構成されている。

第1章では、エネルギーに係わる3つの材料の凝固プロセスにおける微細組織形成として、太陽電池用多結晶シリコンの融液成長におけるファセット形成、次世代ガスタービン用超高温耐熱材料として期待される$MoSi_2/Mo_5Si_3$複相合金の一方向凝固における共晶組織形成、輸送機器軽量化に資するアルミニウム合金のAdditive Manufacturingなどにおける急速凝固を取り上げ、各々における課題を示した。各プロセスの特徴的な微細組織形成をシミュレーションするために、PF法の基礎となる拡散界面（Diffuse Interface）モデルにおいて、結晶異方性や溶質分配の影響を、プロセスの非平衡度に応じて適切に記述することの必要性を示すとともに、本研究の目的を示した。

第2章では、PF法の基礎について、既往研究を紹介しながら説明した。既存のPFモデルをレビューするとともに、既存モデルを用いて著者自身で実施した等温条件下での基本的な凝固結晶粒成長過程のPFシミュレーションの結果を示した。過冷度の影響、界面エネルギー異方性の影響、合金の凝固における溶質分配などを、解析解と比較することで精度を評価するとともに、拡散界面の幅がシミュレーションの定量性に対する主要な制約となることを示した。また、原子数密度を秩序変数として原子レベルの界面構造の形成をシミュレーションすることのできるPhase-Field Crystal モデルの適用について、自身の実行結果を示してその可能性を示すとともに制約についても議論した。

第3章では、多結晶シリコンの融液成長における結晶粒界の進展のメカニズムを解明するため、シリコンの結晶成長で観察されている{111}面ファセットを形成するよう界面エネルギーと界面移動度に異方性を組み込んだPFモデルを構築した。同モデルを用いて、固液界面と粒界の三重点に形成されるファセット状グルーブの角度が、結晶粒界の進展方向を支配し、それに対するエネルギー的効果および運動学的効果を凝固条件で制御することで、特定の方位の結晶を優先成長させられるという、多結晶シリコンを粒界の進展方向を制御して単結晶に近づけるための重要な知見を示した。

第4章では、$MoSi_2/Mo_5Si_3$二相合金の一方向凝固におけるスクリプトラメラ状の複雑共晶組織の形成機構に関する包括的な一連の研究結果を示した。ラメラ間隔については、2次元モデルによる共晶組織のサイズと過冷度の関係をJackson-Huntモデルによる解析解と比較して整合性を検証した。さらに3次元モデルでの特有の分岐挙動の影響についても示し、この組織形成の支配因子として、一方向性凝固による界面移動、レッジ・テラス型の原子配列を持つ$MoSi_2/Mo_5Si_3$相界面での格子ミスフィットの低減、凝固速度と溶質分配速度の関係に由来した共晶界面の傾斜、核生成にともなうロッド状Mo_5Si_3相の連続性の変化を検討し、これらの重畳で組織が複雑化すると結論づけた。

第5章では、アルミニウム合金のAMなどの急速凝固プロセスにおいて溶質分配が平衡から逸脱した条件での凝固を定量的に模擬できる新規なPFモデルとして、Middle Obstacle（MO）モデルを構築した。本モデルは、界面追跡不要なPF法の一般的な利点と、界面での溶質分配の定量性を担保するSharp Interface modelの利点を兼備した。平衡（低速）凝固では、樹枝状晶の形態と先端速度に影響しない拡散界面幅の上限を拡大し、より大きな組織を扱う計算を可能にした。さらに、急速凝固中の非平衡溶質再分配による濃度振動という現象も示した。

第6章では、総括として、本研究で得られた研究成果の意義について、PF法の利点と制限、材料開発研究における計算機シミュレーションの役割と併せて議論するとともに、今後の課題と展望を示した。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（ 朱　伝奇 ）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	教授	小泉　雄一郎
	副 査	教授	吉矢　真人
	副 査	教授	吉川　健
	副 査	准教授	佐藤　和則

論文審査の結果の要旨

結晶性材料の特性は凝固組織に強く依存するためその形成機構の解明と制御が求められている。本研究では、エネルギー関連材料における、ファセット成長、共晶反応、急速凝固などの特徴的凝固過程への界面移動度および界面エネルギーの異方性、溶質分配の影響の解明を主眼に、界面を秩序変数の連続的変化で表す Phase-Field(PF) 法を用いたモデリングに取り組んでいる。本論文は、それらの成果をまとめたものであり、以下の６つの章で構成されている。

第 1 章では、エネルギー関連材料の凝固における重要かつ特徴的な現象として、太陽電池用多結晶 Si の融液成長におけるファセット形成、次世代ガスタービン翼用 $MoSi_2/Mo_5Si_3$ 複相耐熱合金の一方向凝固における複雑な共晶組織の形成、輸送機器軽量化に資する Al 合金の付加製造（AM）における急速凝固を取り上げ、各々における課題を示している。各過程の特徴的な凝固組織形成のシミュレーションのためには、PF 法の基礎となる Diffuse Interface モデルにおいて、結晶異方性や溶質分配の影響を適切に記述する必要があることを指摘するとともに、本研究の目的を示している。

第 2 章では、PF 法の基礎について、先行研究で提案された既存モデルを参照して説明している。また、既存モデルを用いて基本的な結晶成長過程の PF シミュレーションを実施し、その結果を示し、過冷度、界面エネルギー異方性、溶質分配の影響を、解析解と比較して対応を確認している。また、仮想的な界面の幅がシミュレーションの定量性におよぼす影響を示している。さらに、原子数密度を秩序変数とすることで原子レベルの界面形成のシミュレーションが可能といわれる Phase-Field Crystal 法を用いて実施した計算の結果も示し、その可能性と制約について議論している。

第 3 章では、多結晶 Si の融液成長における結晶粒の選択と淘汰の支配因子を解明するため、実験で観察されている{111}面ファセットを形成するように界面エネルギーと界面移動度に異方性を組み込んだ PF モデルを構築している。同モデルを多数の秩序変数を用いる Multi-Phase-Field 法に先駆的に組み込んで多結晶に適用することで、固液界面と粒界の三重点に形成されるファセット状溝の傾斜が、結晶粒界の進展方向を支配することを示している。さらに、界面エネルギーと界面移動度の異方性の寄与を、凝固条件の選択により調整することで粒界の進展方向を制御し、特定の結晶を優先成長させて結晶粒を粗大化させられるという、凝固プロセスの最適化に資する重要な知見を示している。

第 4 章では、$MoSi_2/Mo_5Si_3$ 複相合金の一方向凝固における Script Lamellar 共晶組織形成の支配因子を検証している。まず、2 次元モデルにて、共晶組織のサイズと過冷度の関係を Jackson-Hunt モデルによる解析解と比較し、整合性を確認している。さらに 3 次元モデルでの結果を示し、組織形成の支配因子として、凝固界面の移動方向、異相界面での格子ミスフィットの低減、層の分岐挙動、凝固速度と溶質拡散速度の比に依存した界面の傾斜、核生成にともなう組織の連続性の変化を検討し、これらの重畳により複雑な Script Lamellar 共晶組織が形成されると結論づけている。

第 5 章では、Al 合金の AM などにおける急速凝固に注目し、溶質分配が平衡から逸脱した条件での凝固を模擬できる新規な定量的 PF モデルとして Middle Obstacle（MO）モデルを構築している。同モデルを用いたシミュレーションにより、急速凝固中の非平衡な溶質分配にともなう溶質濃度の振動を再現することにも成功している。本モデルは、界面の追跡が不要な PF 法の一般的な利点と、界面での溶質分配の定量性を保つ Sharp Interface モデルの利点を兼備していることから、計算コストを抑えたより大きな系での定量的組織形成シミュレーションの可能性を広げるものである。

第 6 章では、本研究で得られた研究成果とその意義について総括している。

以上のように、本論文は、結晶性材料の凝固組織形成の支配因子を、PF 法を用いて解明するとともに、今後の PF 法の適用拡大を可能にする新規なモデルを示しており、材料工学の発展に貢献するところが大きい。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。