計算工学講演会論文集　Vol.28 (2023年5月)　計算工学会

共晶反応の定量的フェーズフィールドモデル構築とデータ同化の適用

Quantitative Phase-Field Modeling of Eutectic Reactions and Application of data assimilation

瀬口侑右[1)]，朱伝奇[2)]，奥川将行[3)]，山中晃徳[4)]，野本祐春[5)]，小泉雄一郎[6)]，
Yusuke Seguchi, Chuanqi Zhu, Masayuki Okugawa, Akinori Yamanaka, Sukeharu Nomoto and Yuichiro Koizumi

1) 大阪大学 大学院生（〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1，E-mail: yusuke.seguchi@mat.eng.osaka-u.ac.jp）

2) 大阪大学 大学院生（〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1, E-mail: chuanqi.zhu@mat.eng.osaka-u.ac.jp）

3) 工博 大阪大学 助教（〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1, E-mail: okugawa@mat.eng.osaka-u.ac.jp）

4) 工博 東京農工大学 教授（〒184-8588 東京都小金井市中町2-24-16, E-mail: a-yamana@cc.tuat.ac.jp）

5) 工博 物材機構 NIMS特別研究員（〒305-0047 茨城県つくば市千現1-2-1, E-mail: NOMOTO.Sukeharu@nims.go.jp）

6) 工博 大阪大学 教授（〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1, E-mail: ykoizumi@mat.eng.osaka-u.ac.jp）

In this study, we investigated the effects of the anti-trapping current (ATC) in a phase-field (PF) simulation of eutectic alloy solidification on a concentration distribution to discuss the quantitativeness of the PF model. We also performed a twin experiment using the PF model with ATC for a first step to automatically reproduce the actual microstructure combining with the data assimilation. We found that order-parameter distributions independent of the interface width can be obtained by introducing ATC and mobility correction. In addition, twin experiments using the quantitative model show the order-parameter distribution more similar to the observation data compared to that using the conventional PF model.

Key Words: *Eutectic alloy，Phase-field method，Quantitative model，Data assimilation*

1.　緒言

共晶合金の優れた特性の制御のために，フェーズフィールド（PF）法によって組織形成メカニズムの研究が行われている．しかし，共晶凝固の PF 法では計算に必要なパラメータが多く，実験での組織形成を再現するためのパラメータ調整が課題となっている．近年では，PF シミュレーションによる系の状態予測の精度向上と計算パラメータを適切に決定する手法としてデータ同化が注目されている．データ同化は，ベイズの定理に基づいて，シミュレーション結果を実験から得た観測データに近づくように修正を加えることで，観測値を再現するパラメータの逆推定を行うと同時に，シミュレーションによる系の状態推定精度向上を可能とする手法である．データ同化の手法の中でも，逐次データ同化の一種であるアンサンブルカルマンフィルタ（EnKF）[1]は，多結晶粒成長や固液 2 相系の凝固現象の PF シミュレーションに適用されており，その有効性が示されている[2，3]．これまでに我々は，共晶合金の一方向凝固に対してデータ同化手法を適用可能であり，微細組織形成の再現および 4 つの計算パラメータの同時推定が可能であることを示した[4].

データ同化による組織形成再現のために，共晶合金の組織形成をできる限り正確に記述できる定量的 PF モデルが必要である．一方，合金の凝固 PF 計算では，その固液界面での過剰な溶質トラッピングを抑制するために Anti-Trapping Current (ATC）が導入されている．共晶凝固でも同様に，溶質トラッピングの抑制のために ATC 項を導入が必要と考えられる．加えて，固液 2 相合金とは異なり，共晶合金では α 相/β 相/液相が共存する 3 重点が存在する．ATC 項は固液 2 相界面を想定して導出された項であるため，3 重点では ATC 項を修正して導入する必要があると考えられる．Floch と Plapp は，固液 2 相合金での ATC 項に固液界面の法線ベクトルの内積を重み付けすることで，3 重点の ATC に対して修正を加える方法[5]を提案している．しかし，3 重点の ATC に関する評価は計算の収束性を調べることで行われており，溶質分布に与える影響は十分に議論されていない. 本研究では, 共晶凝固に対するデータ同化適用を目的として，まずは MPF モデルの定量性を議論するために，ATC 項の導入方法の異なる PF モデルを用いて, 共晶合金凝固での 3 重点の ATC が計算結果に与える影響を検討した．そして，ATC を導入した定量 PF モデルを用いて双子実験を行い, データ同化における PF 計算パラメータの推定精度の検討を行なった.

2.　方法

（1）支配方程式

Kim らの CBr_4-C_2Cl_6 共晶凝固マルチ PF (MPF）モデル[6]をベースとして共晶 PF モデルを構築し, 界面モビリティの修正[7]を行った．界面モビリティの修正は，PF 方程式と Gibbs-Thomson 方程式が等価になるように加えられ

© 一般社団法人日本計算工学会

る．共晶凝固では液相から二つの固相（α 相，β 相）が晶出するため，3 つの PF 変数をそれぞれϕ_0: 液相，ϕ_1: α 相，ϕ_2: β 相とした．PF 変数場と濃度場の時間発展方程式を，それぞれ式(1)と式(2)に示す．

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -\frac{2}{N}\sum_{j\neq i}^{N} M_{ij}\left[\sum_{k}^{N}\left\{\left(\frac{\varepsilon_{ik}^2}{2}-\frac{\varepsilon_{jk}^2}{2}\right)\nabla^2\phi_k + (\omega_{ik}-\omega_{jk})\phi_k\right\} - \frac{8}{\pi}\sqrt{\phi_i\phi_j}\Delta g_{ij}\right] \tag{1}$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla\cdot\left[\sum_i D_i\phi_i\nabla c_i + \boldsymbol{J}_{\alpha/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}} + \boldsymbol{J}_{\beta/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}} + \boldsymbol{J}_{\alpha/\beta/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}}\right] \tag{2}$$

ここで，Δg_{ij}はi相とj相間の化学的自由エネルギー密度差であり，化学的駆動力に対応する．また，M_{ij}はフェーズフィールドモビリティであり，界面モビリティK_{ij}と界面幅ηを用いて以下の式で表される．

$$M_{ij} = \frac{\pi^2}{8\eta}K_{ij}^* \tag{3}$$

$$K^* = \frac{K}{1+K\frac{\eta}{8}\Delta S\, m_l^i[D^{ij}]^{-1}(c_{\mathrm{S}}-c_{\mathrm{L}})} \tag{4}$$

ここで，ΔS は溶融エントロピー変化，m_l^iは液相線勾配である．式(1)の ε_{ij} は勾配エネルギー係数，ω_{ij} は Double Obstacle（DO）ポテンシャルの障壁高さであり，これらの係数はそれぞれ，界面エネルギーσ_{ij} と界面幅 η によって式(5)のように記述される．

$$\varepsilon_{ij} = \frac{2}{\pi}\sqrt{2\eta\sigma_{ij}},\quad \omega_{ij} = \frac{4\sigma_{ij}}{\eta} \tag{5}$$

また，$\boldsymbol{J}_{\alpha/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}}$，$\boldsymbol{J}_{\beta/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}}$および$\boldsymbol{J}_{\alpha/\beta/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}}$は，α 相/液相界面，β 相/液相界面および 3 重点（α 相/β 相/液相界面）における ATC である．緒言で述べたように，ATC 項は固液 2 相間界面への導入を仮定されているため，共晶 PF モデルにおける多重点領域で正常に機能することは保証されていない．先行研究によって共晶反応[5]と包晶反応[8]の定量的モデルの構築が行われているが，これらのモデルは Double Well ポテンシャルを使用した MPF モデルである．本研究で用いる DO ポテンシャルを使用した MPF モデルは，定量性の議論が必要である．さらに，先行研究においては，3 重点における ATC の有効性は，計算の収束性によって評価されているが，溶質分布に与える ATC の影響は十分に議論されていない．本研究では，DO ポテンシャルを用いる MPF モデルの定量性を議論するために，異なる 3 種類の方法で ATC 項を導入し，計算を行った．

（2）ATCの計算

DO ポテンシャルを用いた定量 MPF モデルの構築のために，まずは使用した ATC の計算式に関して説明する．本研究では，以下に示す 2 つの形式の ATC を使用した．

1 つ目は，DO ポテンシャルを使用した PF モデルに対して導出された ATC [7,9]である：

$$\boldsymbol{J}_{\alpha/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC,\ DO}} = \frac{\eta}{\pi}\sqrt{\phi_{\mathrm{L}}\phi_\alpha}(c_{\mathrm{L}}-c_\alpha)\frac{\partial\phi_\alpha}{\partial t}\frac{\nabla\phi_\alpha}{|\nabla\phi_\alpha|} \tag{6}$$

$$\boldsymbol{J}_{\beta/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC,DO}} = \frac{\eta}{\pi}\sqrt{\phi_{\mathrm{L}}\phi_\beta}(c_{\mathrm{L}}-c_\beta)\frac{\partial\phi_\beta}{\partial t}\frac{\nabla\phi_\beta}{|\nabla\phi_\beta|}. \tag{7}$$

2 つ目は，式(6), (7)の平方根内の関数を変更したものである：

$$\boldsymbol{J}_{\alpha/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC,ROOT}} = \frac{\eta}{\pi}\sqrt{\frac{\phi_{\mathrm{L}}}{\phi_\alpha+\phi_{\mathrm{L}}}\times\frac{\phi_\alpha}{\phi_\alpha+\phi_{\mathrm{L}}}}(c_{\mathrm{L}}-c_\alpha)\frac{\partial\phi_\alpha}{\partial t}\frac{\nabla\phi_\alpha}{|\nabla\phi_\alpha|} \tag{8}$$

$$\boldsymbol{J}_{\beta/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC,ROOT}} = \frac{\eta}{\pi}\sqrt{\frac{\phi_{\mathrm{L}}}{\phi_\beta+\phi_{\mathrm{L}}}\times\frac{\phi_\beta}{\phi_\beta+\phi_{\mathrm{L}}}}(c_{\mathrm{L}}-c_\beta)\frac{\partial\phi_\beta}{\partial t}\frac{\nabla\phi_\beta}{|\nabla\phi_\beta|}. \tag{9}$$

図 1(a) に$\phi_\alpha+\phi_\beta+\phi_{\mathrm{L}}=1$ の条件の下での，$\sqrt{\phi_i\phi_{\mathrm{L}}}$の三角ダイアグラムを示す（式(6), (7)に対応）．図 1(a)より，$\sqrt{\phi_i\phi_{\mathrm{L}}}$の値は，α 相/液相界面（$\phi_0$-$\phi_1$線上）に比べて 3 重点（三角形内部）で小さくなる．つまり，式(6), 式(7)で表される ATC を共晶系に適用すると，3 重点における ATC の値が過小評価されてしまう．そこで，$\sqrt{\phi_i\phi_{\mathrm{L}}}$の代わりに，式(10)のような関数を考案した．

$$\sqrt{\frac{\phi_i}{\phi_i+\phi_{\mathrm{L}}}\times\frac{\phi_{\mathrm{L}}}{\phi_i+\phi_{\mathrm{L}}}},\quad (i=\alpha,\ \beta) \tag{10}$$

$\phi_\alpha+\phi_\beta+\phi_{\mathrm{L}}=1$ の下での，式(10)の三角ダイアグラムを図 1(b)に示す．この場合，3 重点であっても，平方根の大きさは α 相と液相の存在比率のみで決定されるため，α 相/液相界面と同様となる．

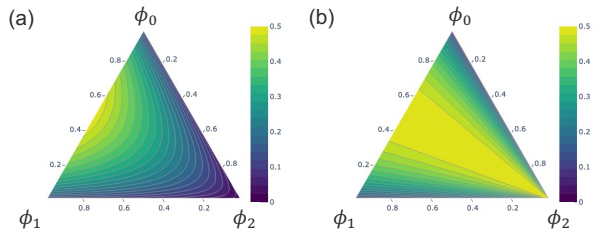

図 1　(a) $\sqrt{\phi_i\phi_{\mathrm{L}}}$と (b) 式(10)の三角ダイアグラム

（3）3重点へのATC導入

3重点ではα相，β相，液相の三相が共存しているため，固相液相間の溶質交換が複雑となる．これまでにFlochとPlappによって共晶定量的PFモデル[5]が提案されているが，3重点におけるATCの取り扱いは未だ確立されていない．本研究では，ATC項の異なる2通りの方法で計算を行い，それぞれの結果を比較した：

（i）3 重点の ATC を α 相/液相界面の ATC と β 相/液相界面の ATC の和とした．

$$\boldsymbol{J}_{\alpha/\beta/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}} = \boldsymbol{J}_{\alpha/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}} + \boldsymbol{J}_{\beta/\mathrm{L}}^{\mathrm{ATC}} \tag{11}$$

（ii）α 相/液相界面の ATC と β 相/液相界面の ATC が 3 重点において完全に打ち消し合うことを仮定して，3 重点の ATC をゼロとした．

© 一般社団法人日本計算工学会

$$J^{\mathrm{ATC}}_{\alpha/\beta/\mathrm{L}} = 0 \tag{12}$$

（4）シミュレーション条件

本研究では，CBr_4-C_2Cl_6共晶系の一方向凝固実験[10]により得られる観測データを使用したデータ同化の実施を想定して，CBr_4-C_2Cl_6共晶系を対象として2次元モデルを用いた計算を行った．PF計算パラメータを表1に示す．温度勾配Gおよび冷却速度dT/dtは，それぞれ8 K/mmおよび1.6×10^{-2} K/sとした．また，計算領域底部の過冷度が0.2 Kとなるように初期温度を設定した．

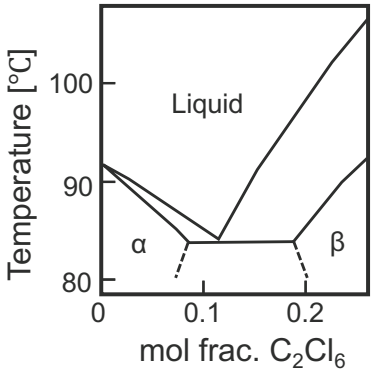

図２　CBr_4-C_2Cl_6 共晶系状態図 (文献[10]を基に作成)

表1 PF計算で用いたパラメータ

Parameter	Value
C_2Cl_6 concentration of initial liquid phase, c_0	11.8 at.%
Mesh size, Δx	0.2 μm
Time step, Δt	1×10^{-6} s
α-L interface mobility, $K_{\alpha L}$	1×10^{-9} m^4/J s
β-L interface mobility, $K_{\beta L}$	1×10^{-9} m^4/J s
α-β interface mobility, $K_{\alpha\beta}$	0 m^4/J s
Diffusion coefficient in liquid, D_L	5×10^{-10} m^2/s [5]
Diffusion coefficient in liquid, D_S	5×10^{-14} m^2/s [5]
α-L interface energy, $\sigma_{\alpha L}$	6.6×10^{-3} J/m^2 [5]
β-L interface energy, $\sigma_{\beta L}$	5.8×10^{-3} J/m^2 [5]
α-β interface energy, $\sigma_{\alpha\beta}$	11.5×10^{-3} J/m^2 [5]

3.　データ同化

（1）アンサンブルカルマンフィルタ（EnKF）

本研究では逐次データ同化手法であるEnKFによりデータ同化を行なった．相の分布を観測データとし，α相/液相界面とβ相/液相界面における界面モビリティ$K_{\alpha L}$および$K_{\beta L}$を推定対象とした．時刻tにおける状態ベクトル$\boldsymbol{\xi}_t$を式(13)に示す．

$$\boldsymbol{\xi}_t = \begin{bmatrix} \phi_{\mathrm{L},(1,1)} \cdots \phi_{\mathrm{L},(N,M)}\ \phi_{\alpha,(1,1)} \cdots \phi_{\alpha,(N,M)} \\ \phi_{\beta,(1,1)} \cdots \phi_{\beta,(N,M)}\ c_{(1,1)} \cdots c_{(N,M)} \end{bmatrix}^T \tag{13}$$

状態ベクトル$\boldsymbol{\xi}_t$は各格子点 $(N \times M)$ の3つのPF変数ϕ_iと濃度cを含む $4 \times (N \times M)$ 次元のベクトルである．そのため，状態ベクトル$\boldsymbol{\xi}_t$と推定対象とするパラメータを含むベクトルである，拡大状態ベクトル$\boldsymbol{x}_t$は式(14)で表される．

$$\boldsymbol{x}_t = \begin{bmatrix} \phi_{\mathrm{L},(1,1)} \cdots \phi_{\mathrm{L},(N,M)}\ \phi_{\alpha,(1,1)} \cdots \phi_{\alpha,(N,M)} \\ \phi_{\beta,(1,1)} \cdots \phi_{\beta,(N,M)}\ c_{(1,1)} \cdots c_{(N,M)}\ K_{\alpha L}\ K_{\alpha L} \end{bmatrix}^T \tag{14}$$

拡大状態ベクトル $\boldsymbol{x}_t$ の時間発展は次式で計算される．

$$\boldsymbol{x}_t = f_t(\boldsymbol{x}_{t-1}) + \boldsymbol{v}_t \tag{15}$$

ここで，f_tは秩序変数場の時間発展（式(1), (2)）に対応する非線形演算子であり，$\boldsymbol{v}_t$はモデル誤差に対応するシステムノイズである．

観測データを含むベクトルである観測ベクトル $\boldsymbol{y}_t$ は次式で定義される．

$$\boldsymbol{y}_t = \boldsymbol{H}_t \boldsymbol{x}_t + \boldsymbol{w}_t \tag{16}$$

ここで，$\boldsymbol{H}_t$ は観測演算子と呼ばれる演算子であり，拡大状態ベクトルに作用し，拡大状態ベクトルから観測ベクトルに対応するデータを抽出する．また，$\boldsymbol{w}_t$は観測ノイズである．本研究では観測データとして，相の分布に対応するPF変数場を使用したため，観測演算子 $\boldsymbol{H}_t$は $1 \times (4 \times N \times M + 2)$ 次元のベクトルであり，最初の $3 \times (N \times M)$ 成分は1，その他の成分は0である．観測ベクトル $\boldsymbol{y}_t$ は式(17)のように表される．

$$\boldsymbol{y}_t = \begin{bmatrix} \phi^{\mathrm{o}}_{\mathrm{L},(1,1)} \cdots \phi^{\mathrm{o}}_{\mathrm{L},(N,M)}\ \phi^{\mathrm{o}}_{\alpha,(1,1)} \cdots \phi^{\mathrm{o}}_{\alpha,(N,M)} \\ \phi^{\mathrm{o}}_{\beta,(1,1)} \cdots \phi^{\mathrm{o}}_{\beta,(N,M)} \end{bmatrix}^T \tag{17}$$

ここで，上付き文字 o は観測値であることを表す．

EnKF では，並列に実行される個々のシミュレーション結果からなるアンサンブルを用いて確率密度関数の近似計算を行う．アンサンブルを構成する要素をアンサンブルメンバーと呼ぶ．拡大状態ベクトル $\boldsymbol{x}_t$ の時間発展（式(15)）は，各アンサンブルメンバーに対して行われる．

$$\boldsymbol{x}^{(i)}_{t|t-1} = f_t\left(\boldsymbol{x}^{(i)}_{t-1|t-1}\right) + \boldsymbol{v}^{(i)}_t \tag{18}$$

ここで，上付き文字 (i) はアンサンブルメンバーを識別する文字であり，下付き文字の | で区切られた左側の t は MPF モデルにおける時刻，右側の t-1 は観測値の時刻である．つまり，式(18)は i 番目のアンサンブルメンバーに対して，時刻 t-1 までの観測値が同化された拡大状態ベクトル $\boldsymbol{x}_t$ を，MPF モデルによって時刻 t へと時間発展させることを意味する．アンサンブルから平均値$\overline{\boldsymbol{x}}_{t|t-1}$と分散共分散行列 $\boldsymbol{P}_{t|t-1}$ を計算し，これらを用いてカルマンゲイン $\boldsymbol{K}_t$ を得る．

$$\overline{\boldsymbol{x}}_{t|t-1} = \frac{1}{N_{\mathrm{ens}}} \sum_{i=1}^{N_{ens}} \boldsymbol{x}^{(i)}_{t|t-1} \tag{19}$$

$$\boldsymbol{P}_{t|t-1} = \frac{1}{N_{\mathrm{ens}} - 1} \sum_{i=1}^{N_{\mathrm{ens}}} \left(\boldsymbol{x}^{(i)}_{t|t-1} - \overline{\boldsymbol{x}}_{t|t-1}\right)\left(\boldsymbol{x}^{(i)}_{t|t-1} - \overline{\boldsymbol{x}}_{t|t-1}\right)^T \tag{20}$$

$$\boldsymbol{K}_t = \boldsymbol{P}_{t|t-1}\boldsymbol{H}_t^T\left(\boldsymbol{H}_t\boldsymbol{P}_{t|t-1}\boldsymbol{H}_t^T + \boldsymbol{R}_t\right)^{-1} \tag{21}$$

© 一般社団法人日本計算工学会

ここで，N_{ens} はアンサンブルメンバーの総数（アンサンブルサイズ），$\boldsymbol{R}_t$ は観測ノイズの分散共分散行列である．各アンサンブルメンバーに対して，ベイズの定理に基づいた観測データによる修正（フィルタリング）が行われる．

$$\boldsymbol{x}_{t|t}^{(i)} = \boldsymbol{x}_{t|t-1}^{(i)} + \boldsymbol{K}_t\left(\boldsymbol{y}_t + \tilde{\boldsymbol{w}}_t^{(i)} - \boldsymbol{H}_t\boldsymbol{x}_{t|t-1}^{(i)}\right) \qquad (22)$$

EnKF では，MPF モデルによる状態の時間発展（式(18)）と，フィルタリング（式(22)）を繰り返すことで，状態およびパラメータを推定する．

（2）双子実験

ATCを導入していないPFモデルとATC導入モデルを用いて双子実験を行った．観測データは，界面幅 $\eta = 1.0$ μmとしたATCを導入していないモデルを用いて，表1に示す計算条件で生成した．計算結果のうち，液相，α相，β相の3つのPF変数場を観測データとした．界面モビリティの推定を，界面幅 $\eta = 2.0$ μmとしたATCを導入していないPFモデルとATC導入PFモデルを用いて，表2に示す条件で行った．表2に示す標準偏差（SD）は，それぞれ推定するパラメータの初期ノイズ標準偏差（σ^0），システムノイズの標準偏差（σ^{sys}），観測ノイズの標準偏差（σ^{obs}）である．

表2　双子実験で用いたパラメータ．

Parameter	Value
Ensemble size, N_{ens}	50
Filtering interval, $\Delta t_{\mathrm{filter}}$	1000 steps
Initial mean of $K_{\alpha\mathrm{L}}$, $\overline{K}_{\alpha\mathrm{L}}^{0}$	1×10^{-10} m^4/J s
Initial mean of $K_{\beta\mathrm{L}}$, $\overline{K}_{\beta\mathrm{L}}^{0}$	1×10^{-10} m^4/J s
Initial SD of $K_{\alpha\mathrm{L}}$, $\sigma_{K_{\alpha\mathrm{L}}}^{0}$	1×10^{-11} m^4/J s
Initial SD of $K_{\beta\mathrm{L}}$, $\sigma_{K_{\beta\mathrm{L}}}^{0}$	1×10^{-11} m^4/J s
SD of system noise for $K_{\alpha\mathrm{L}}$, $\sigma_{K_{\alpha\mathrm{L}}}^{\mathrm{sys}}$	1×10^{-12} m^4/J s
SD of system noise for $K_{\beta\mathrm{L}}$, $\sigma_{K_{\beta\mathrm{L}}}^{\mathrm{sys}}$	1×10^{-12} m^4/J s
SD of observation noise, σ^{obs}	1×10^{-3}

4.　結果と考察

（1）ATCの有無が界面形状に与える影響

まずは，ATC 導入の効果を見るために，ATC を導入したモデルのうち，(i) 3 重点の ATC を α 相/液相界面の ATC と β 相/液相界面の ATC の和としたモデルと，ATC を導入していないモデルとの比較を行った．それぞれのモデルの界面幅 η を 1.0，1.4 および 2.0 μm として計算を行った．図 3 にそれぞれのモデルでの 4,000,000 steps における PF 変数場を示す．

ATC を導入していないモデル（図 3 (a)）では，これまで報告されているように[5，9，11]，界面幅に依存して界面位置が変化した．一方，ATC を導入したモデル（図 3 (b)）では，界面位置は界面幅に依存しない．それぞれの固液界面位置近傍の濃度プロファイルを図 4 に示す．

ATCを導入していないモデル（図4 (a-1, b-1)）では，濃度分布が界面幅に依存して異なった．α相/液相界面（図4 (a-1)）での違いが大きく，界面幅が大きくなると，液相側の溶質濃度が小さくなった．これは固液界面における溶質トラッピングが原因であると考えられる．また，界面幅 $\eta = 2.0$ μmの場合には，α相/液相界面が突き出した形状となった．液相の溶質濃度が小さいほど，液相からα相が晶出する駆動力が大きくなったためと考えられる．一方，ATC導入モデル（図4 (a-2, b-2)）では，濃度分布は界面幅によらず一定の値となった．ATC項の導入によって固液界面における溶質分配が正常化されていると考えられる．

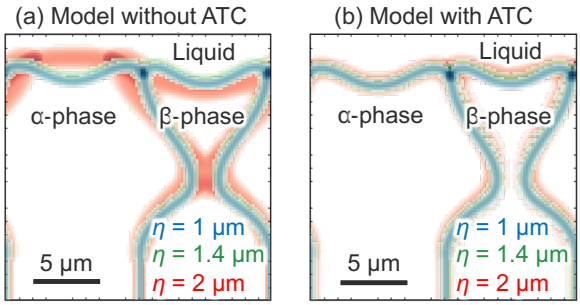

図 3　(a) ATC を導入していないモデルと (b) ATC を導入したモデルの界面位置の比較.

（2）3重点のATCが濃度分布に与える影響

3重点のATCの濃度分布への寄与を検討するために，ATCを導入したモデルのうち，（i）3重点のATCをα相/液相界面のATCとβ相/液相界面のATCの和としたモデルと，（ii）3重点のATCをゼロとしたモデルの比較した．図5に各モデルで計算した，ATCに由来する濃度変化量を示す．ATCによって，α相/液相界面では固相から液相への溶質の吐出しが，β相/液相界面では固相から液相への溶質の吸込みが生じる．3重点のATCをα相/液相界面のATCとβ相/液相界面のATCの和としたモデル（図5 (a)）では，3重点の濃度変化がα相/液相界面の濃度変化とβ相/液相界面の濃度変化の和となっている．また，3重点のATCをゼロとしたモデル（図5 (b)）では，3重点の濃度変化がゼロとなっ

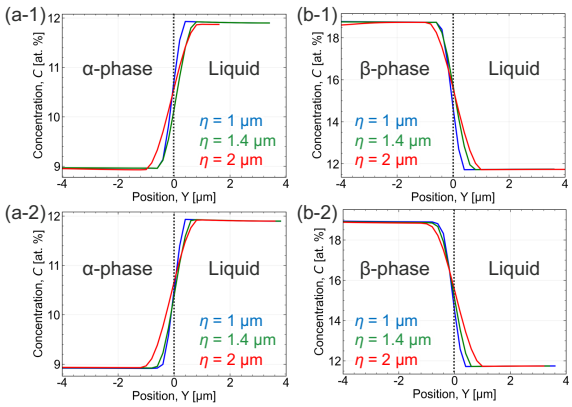

図 4　(a-1,b-1) ATC を導入していないモデルおよび (a-2, b-2) ATC 導入したモデルの (a) α/L 固液界面および (b) β/L 固液界面近傍の濃度プロファイル.

© 一般社団法人日本計算工学会

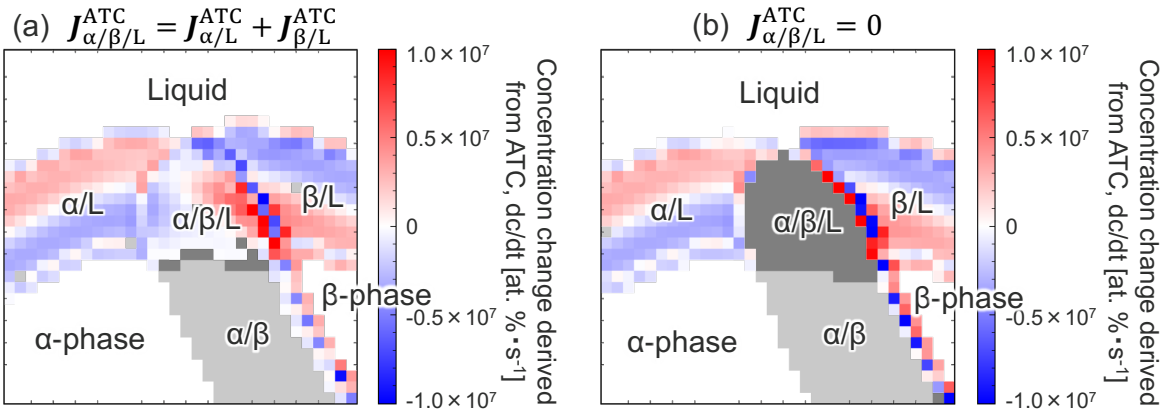

図 5　ATC に起因する局所濃度変化. (a) $J^{ATC}_{\alpha/\beta/L} = J^{ATC}_{\alpha/L} + J^{ATC}_{\beta/L}$とした場合, (b) $J^{ATC}_{\alpha/\beta/L} = 0$とした場合.

ている.

図6は，3重点のATCをα相/液相界面のATCとβ相/液相界面のATCの和としたモデルの濃度分布と，3重点のATCをゼロとしたモデルの濃度分布の差分である．差分が正（赤色）であることは3重点のATCの寄与によって濃度が増加したことを，差分が負（青色）であることは減少したことを意味する．3重点だけでなく，3重点に隣接する固液界面領域でも最大で0.5 at.%程度，つまりα相とβ相の組成差の5%程度の濃度差が生じた．一方，今回の計算結果からは，3重点のATCの有無による界面形状の違いは見られなかった．固液界面移動の駆動力は組成的過冷に起因するため，固液界面近傍の溶質濃度場が異なれば，界面移動の駆動力が変化し，結果として界面形状にも違いが生じる．特に，3重点近傍で生じるα相β相間の溶質交換は微細組織形成に大きく影響を及ぼすため，3重点にATCを導入することで界面形状が大きく変化することが予想される．しかしながら，本研究では，対象としたCBr_4-C_2Cl_6共晶系の固相間の組成差が小さいことに加え，設定した過冷度が小さかったため，固液界面における固相液相間の組成差が小さく，ATCの寄与が界面形状に影響を与えるほど大きくなかったと考えられる．

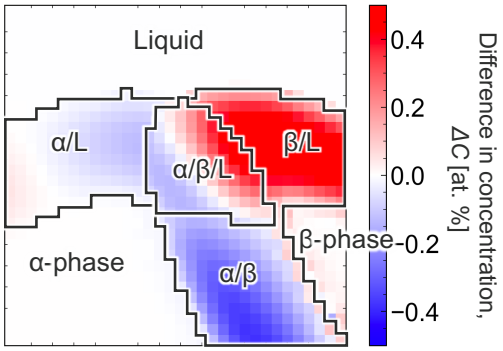

図 6　3 重点の ATC が濃度分布に与える影響.

(3) データ同化によるパラメータ推定

ATCを導入していないPFモデルと（i）ATC導入モデルを用いて双子実験を行い，推定された界面モビリティの時間変化を比較した．

図7にATCを導入していないPFモデルを用いた双子実験における推定結果を示す．パラメータ推定の結果は，観測データの生成に用いた値から大きく外れた．また，PF変数場の推定結果は，25,000 steps時点で不安定な界面を示した．図8にATC導入モデルを用いた双子実験の推定結果を示す．こちらもATCを導入していないモデルを使用した場合と同様に，パラメータの推定値は観測データの生成に用いた値から大きく外れた値となった．しかし，PF変数場の推定結果は，50,000 stepsの時点でも安定な界面

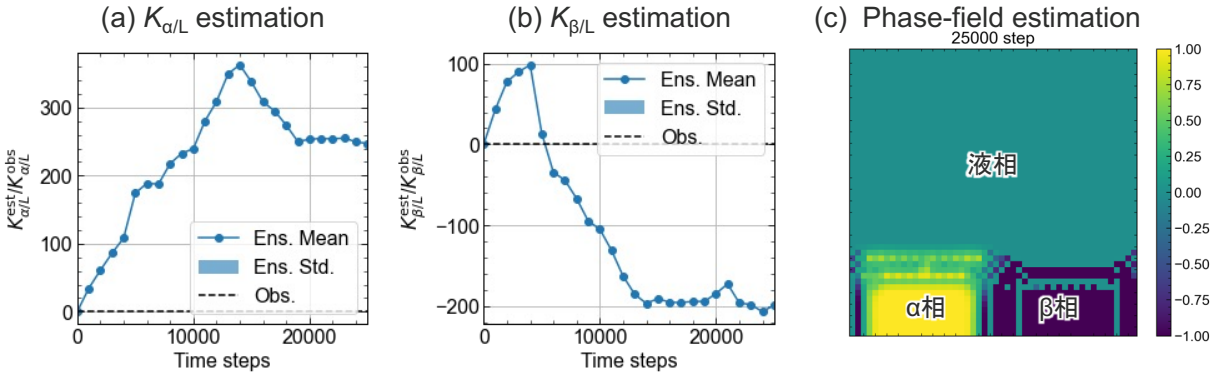

図 7　ATC を導入していないモデルを用いた推定結果. (a) $K_{\alpha/L}$ の推定値の変化, (b) $K_{\beta/L}$ の推定値の変化, (c) 25000 step における PF パラメータの分布.

© 一般社団法人日本計算工学会

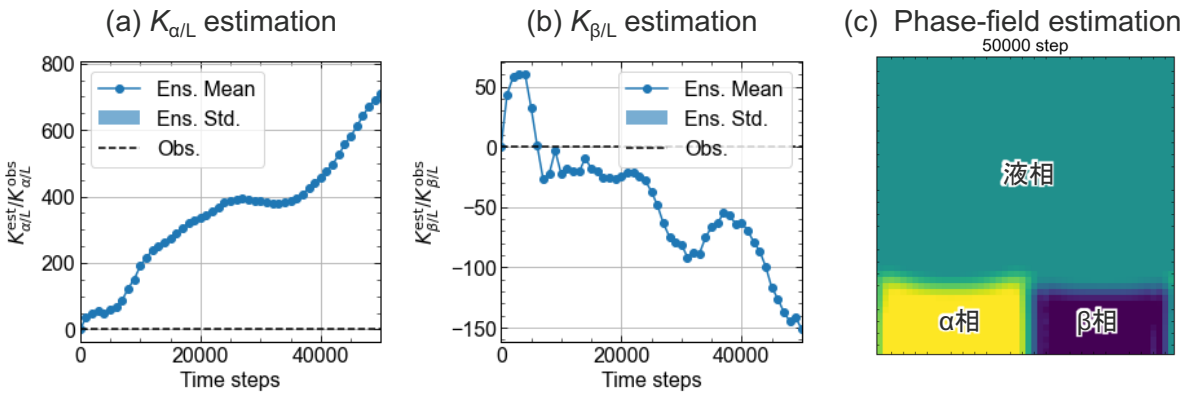

図 8　ATC 導入モデルを用いた推定結果. (a) $K_{\alpha/L}$ の推定値の変化, (b) $K_{\beta/L}$ の推定値の変化, (c) 50000 step における PF パラメータの分布.

を示した.

ATC導入モデルを用いて推定したと観測データの界面位置を比較して図9に示す．推定結果から得た界面は，観測データの界面と同様の形状であった．ATC導入モデルでは界面モビリティの修正（式(4)）が行われているのに加え，過冷度が小さく界面移動の駆動力が小さかったために，界面モビリティの推定値が大きく変動しても界面移動に大きく影響しなかったと推測される．今後，界面移動の駆動力が大きく，界面モビリティの変動が界面移動に大きな変動をもたらすような凝固条件での双子実験を行うことで，より精度の高い界面モビリティの推定が期待される．

5.　結論

共晶凝固に対して，その場観察結果を観測データとしたデータ同化を行うために，共晶反応の定量的モデルの構築と双子実験によるパラメータ推定を行った．3重点のATCが計算結果に与える影響を調査すると，3重点だけでなく，3重点に隣接する固液界面においても濃度変化が生じることが明らかとなった．ATCを導入していないモデルとATCを導入したモデルに対して双子実験を行うと，

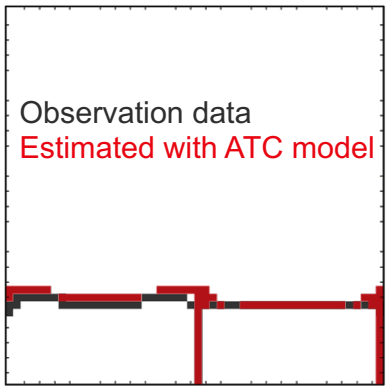

図 9　推定結果と観測データの界面位置の比較.

両者でパラメータの推定結果に顕著な違いは見られなかった．一方，ATC定量モデルの方がより観測データと類似したPF変数場の推定可能であることが示された．

参考文献

[1] A. Yamanaka et al., Ensemble Kalman filter-based data assimilation for three-dimensional multi-phase-field model: Estimation of anisotropic grain boundary properties, *Mater. Des.*, **165** (2019) 107577.

[2] M. Ohno, Y. Oka, S. Sakane, Y. Shibuta, T. Takaki, Bayesian inference of solid-liquid interfacial properties out of equilibrium, *Physical Review E,* **101** (2020) 052121.

[3] G. Evensen, The ensemble Kalman filter: Theoretical formulation and practical implementation, *Ocean Dyn.* **53**, 343–367, (2003).

[4] 瀬口侑右 他，日本金属学会2022年春期講演大会，講演概要 85 (2022).

[5] R. Floch, M. Plapp, Quantitative phase-field modeling of two-phase growth, *Physical Review E* **72**, 011602, (2005).

[6] S. G. Kim, A phase-field model with antitrapping current for multicomponent alloys with arbitrary thermodynamic properties, *Acta Materialia*, **55**, 4391-4399, (2007).

[7] I. Steinbach, Phase-field models in materials science, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, **17**, 073001, (2009).

[8] M. Ohno, K. Matsuura, Quantitative phase-field modeling for two-phase solidification process involving diffusion in the solid, *Acta Materialia*, **58**, 5749-5758, (2010).

[9] A.Carré et.al., Implementation of an antitrapping current for a multicomponent multiphase-field ansatz, *Journal of Crystal Growth*, **380**, 1, 5-13, (2013).

[10] M. Ginibre, S. Akamatsu, G. Faivre, Experimental determination of the stability diagram of a lamellar eutectic growth front, *Physical Review E*, ***56***, 780–796, (1997).

[11] M. Ohno, K. Matsuura, Quantitative phase-field modeling for dilute alloy solidification involving diffusion in the solid, *Physical Review E,* **79**, 031603 (2009).

© 一般社団法人日本計算工学会