特集

今ドキのコンピュータシミュレーション

フェーズフィールド法とその応用*

大 出 真知子**

Phase-field Method and its Application*

by ODE Machiko**

キーワード フェーズフィールド法, 凝固シミュレーション, ミクロ組織形成, 急速凝固, 包晶凝固

概 要

凝固組織シミュレーション手段としてフェーズフィールド法を紹介する。まずは「フェーズフィールド」の意味やその支配方程式を簡単に説明し、鋼を対象とした初期凝固組織形成過程や包晶凝固プロセスへの適用結果を紹介する。最後に溶接技術分野に対するフェーズフィールド法の適用性について述べる。

1. 緒 言

産業界で最も効果を上げている Computer Aided Engineering (CAE) は、マクロスケールを計算対象とした分野に集中している。応力釣り合いの式、熱伝導方程式、ナビエーストークスの方程式などを有限差分法や有限要素法を用いて離散化し、複雑形状を持つ対象系に対して解いていく。溶接技術分野にもこれは当て嵌まり、当該分野でのコンピュータシミュレーションと言えば、熱弾塑性解析ソフトウェアを用いて、温度分布を予測し熱応力や変形等を見積る事例が多い¹⁻³⁾。ただし、一部の商用ソフトウェアでは CCT 曲線 (Continuous Cooling Transformation Curve) をデータベースとして持ち、ミクロスケールの相変態による物性値変化を考慮する事ができる⁴⁾。

材料物性は合金組成によって決まるのではなく、その構成相-ミクロ組織によって決まる事は良く知られている。特に、溶接の様な高い冷却速度、そして冷却速度によって異なる組織が出現する鋼を対象とする場合、CCT 曲線 (Continuous Cooling Transformation Curve) を連成しミクロ組織を考慮した解析は、より正確なシミュレーションのために不可欠である。しかし溶接時に考慮

しなければならない相変態は固相変態だけではない。代表的な溶接欠陥の一つに凝固割れがあるように、固液変態-凝固時のミクロ組織形成の予測も重要な課題として認識されている。

凝固シミュレーションには、マクロスケールから、伝熱、流動、溶質偏析、界面曲率、界面カインエティクス、核形成等、様々な考慮すべき支配因子がある。計算機性能が向上した現在においても、これらをすべて取り入れたシミュレーションは容易ではなく、用途や対象スケールに応じて最適な手法が選ばれている。最初に述べたとおり、マクロスケールを計算対象とした、流動や凝固伝熱解析は既に多くのソフトウェアが市販されており⁵⁾、溶接現象の解析にも用いられている。一方、主に偏析以下スケールの凝固ミクロ組織形成過程を対象とする手法は、モンテカルロ法^{6, 7)}、セルオートマトン法^{8, 9)}、フロントトラッキング法¹⁰⁾、フェーズフィールド法などあるが¹¹⁻¹⁷⁾、筆者の知る限り、唯一市販ソフトウェアが開発されている手法がフェーズフィールド法である¹⁸⁾。現在、その適用範囲は限られており、条件設定や計算結果の理解には、経験も必要であるものの、それでも、フェーズフィールド法は多相・多成分系の計算が容易な事や、支配方程式は Ginzberg-Landau 方程式を基礎とし物理的基盤が堅牢であることから、今後の実用利用が進むものと考えられる。本稿では、フェーズフィールド法の紹介と筆者が行った解析例の中から鋼に関連した事例の紹介を行う。

2. フェーズフィールド法

フェーズフィールド法では相の存在を表す、フェーズフィールド (Phase-field, ϕ) が定義される。これは温度場 (Temperature-field) や濃度場 (Concentration-field) と同様の状態変数で、凝固現象を取り扱う場合 ϕ は固相率と関連する量である。例えば図 1 に示すように液相の中に固体が存在する場合、点線矢印に沿った ϕ の

*原稿受付 平成 23 年 6 月 7 日

** 物質・材料研究機構 National Institute for Materials Science

図1 フェーズフィールドの分布例

値は、液相中で $\phi=0$ 、固相中で $\phi=1$ 、固液界面で 0 から 1 に急峻に変化する。ここで界面は有限の幅を持つと定義されるのがポイントで、実際の数値計算で離散化する際に ϕ の空間微分を計算可能にする。この ϕ を使うと、系の各点における自由エネルギーは、

$$f = h(\phi)f^s + (1-h(\phi))f^L + Wg(\phi) \quad (1)$$

と書ける。ここで、 f^s , f^L は固相と液相の自由エネルギーで、CALPHAD 法 (Calculation Phase Diagram) で評価された自由エネルギー関数をそのまま使う事ができる。ここで、 $h(\phi) = \phi^2(3-2\phi)$, $h(0)=0$, $h(1)=1$ の単調増加関数で ϕ を固相率に変換する関数であり、 $g(\phi) = \phi^2(1-\phi)^2$, $g(0)=g(1)=0$, $g(\phi)>0$ (0, 1) を満たす 2 重井戸型関数で固液界面エネルギーを表す。これに界面を有限幅に維持するための勾配エネルギーを加え、対象領域全体に対して積分すると、系の全自由エネルギー、 F を得る。

$$F = \int \left\{ f(\phi, c, T) + \frac{\varepsilon^2}{2} (\nabla \phi)^2 \right\} dV \quad (2)$$

c と T は濃度と温度場、 ε と W は界面エネルギー σ と界面厚さ 2λ に関連付けられるパラメーターである。フェーズフィールド方程式は、 ϕ の時間変化が上式 F の ϕ による汎関数微分に比例すると仮定して導かれる。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -M \frac{\delta F}{\delta \phi} \quad (3)$$

ここで、比例定数 M は界面カイネティクス (凝固界面への原子の取り込み抵抗、 β) と関連付けられる。式 (3) の意味するところは、1) ϕ の分布状態 (ミクロ組織) は系全体の自由エネルギー F が極小をとる状態 (平衡状態もしくは準安定平衡) に至るまで変化する 2) ミクロ組織形成は F が最も早く減少するように起こる、となる。具体的に汎関数微分を行うと式 (3) は、以下の様になる。

$$\frac{1}{M} \frac{\partial \phi}{\partial t} = \varepsilon^2 \nabla^2 \phi - W \frac{\partial g(\phi)}{\partial \phi} - \frac{\partial h(\phi)}{\partial \phi} (f^s - f^L + (c_{is} - c_{il})\mu) \quad (4)$$

c_{is} と c_{il} は、界面での固相と液相の濃度であり、 μ はケミカルポテンシャルである。式 (4) の中には、3つのパラメータが存在しているが、それぞれ以下のように実際の物性値と関連付けられる¹⁹⁻²¹⁾。

$$2\lambda = \frac{\varepsilon}{\sqrt{2W}} \int_{\phi_a}^{\phi_b} \frac{d\phi_0}{\phi_0(1-\phi_0)} = \frac{\varepsilon}{\sqrt{2W}} \ln \frac{\phi_b(1-\phi_a)}{\phi_a(1-\phi_b)} = 2.2 \frac{\sqrt{2}\varepsilon}{\sqrt{W}} \quad (0.1-0.9 \text{ の時}) \quad (5)$$

$$\sigma = \varepsilon^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d\phi}{dx} \right)^2 dx = \varepsilon \frac{\sqrt{W}}{3\sqrt{2}} \quad (6)$$

ここで、

$$\phi_0(x) = \frac{1}{2} \left[1 - \tanh \left(\frac{\sqrt{W}}{\sqrt{2}\varepsilon} x \right) \right]$$

また、

$$M^{-1} = \frac{\varepsilon^2}{\sigma} \left[\frac{RT}{V_m} \frac{1-k^e}{m^e} \beta + \frac{\varepsilon}{D_L \sqrt{2}\omega} \zeta(c_S^e, c_L^e) \right] \quad (7)$$

$$\zeta(c_S^e, c_L^e) = f_{cc}^S(c_S^e) f_{cc}^L(c_L^e) (c_S^e - c_L^e)^2 \times \int_0^1 \frac{h_r(\phi)[1-h_r(\phi)]}{[1-h_r(\phi)]f_{cc}^S(c_S^e) + h_r(\phi)f_{cc}^L(c_L^e)} \frac{d\phi}{\phi(1-\phi)}$$

パラメータの導出方法についての詳細な説明は割愛するが、すべてが物性値と結びついていて一意に決まることだけは注記しておく。

フェーズフィールド法では、式 (4) に拡散方程式や熱伝導方程式を連立する。例えば、拡散方程式は、

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot \left(D_L q(\phi) \frac{c_L}{c} (\phi \nabla c_S + (1-\phi) \nabla c_L) - J_{at} \right) \quad (8)$$

となる^{21, 22)}。ここで、 D は溶質拡散係数、 $q(\phi) = (q(0) + (q(1) - q(0))\phi)$, $q(0) = 1$, $q(1) = kD_S/D_L$ であり、 J_{at} は Anti-trapping term と呼ばれる濃度補正項である^{19, 20, 22-24)}。また、熱伝導方程式は、

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \nabla^2 T + \frac{L}{c_p} \frac{\partial h(\phi)}{\partial \phi} \frac{\partial \phi}{\partial t} \quad (9)$$

となり、通常の温度拡散項に加え潜熱発生に関する第 2 項が追加されている²⁵⁾。ここで α は温度拡散係数、 L は線熱、 c_p は比熱である。

フェーズフィールド法の特徴は、全ての支配方程式が相の状態の場合分けされることなく、全系に対して単一形式で書けることにある。そのため、計算プログラムはシンプルで 100~500 行程度で書ける事が多い。既にソースプログラムも公開されているので^{11, 26)}、興味をもたれた方は是非とも実際に計算を試みて頂きたい。

3. 適用例

3.1 鋼の初期凝固組織予測²⁵⁾

ストリップキャスティング製造法などでは、良好な表面品質を安定して得る事が課題である。このためには、鑄片表面付近の初期凝固組織の生成と成長を理解し、これを制御することが必要となる。そこで初期凝固組織形成過程の解析をフェーズフィールド法を用いて行った。図 2 に計算領域を示す。初期温度は液相線温度、600 K 一定の鑄型面からニュートン冷却されたとした (熱伝達係数 10000 kW/m²)。温度場は想定製品厚さ 2 mm の半分を用意、濃度場とフェーズフィールドは表面から 200 μ m のみを計算する。また、溶質拡散と温度拡散係数は 2 桁以上大きさが異なるため、計算時間短縮を目的としてサイズの異なる計算メッシュダブルグリッドを用いて計算している。

図3に、フェーズフィールド法を用いて計算した Fe-0.5mass%C の初期凝固組織の形成過程を示す。セルからデンドライトに移行する様子が良く再現されている。デンドライトの成長先端速度の支配因子として製品内部から表面方向への温度拡散だけ考えた場合、成長速度は時間の平方根に比例すると予想される。しかし計算より求められる成長速度は時間に対してほぼ比例関係になる事が分った。図3 (g) に温度等高線の計算結果を示す。図から明らかな通り、デンドライト成長先端付近では成長方向だけでなく側面にも熱が流れるため、成長速度が平方根よりも早くなる事が分った。

図4に熱流方向に対する優先成長方位の傾きがマイクロ組織に及ぼす影響を示す。1次枝の成長方位、速度は殆ど影響を受けないものの、2次枝の発達、45度まで傾くと製品内部方向にしか伸びない等、影響を受けてるよ

図2 初期凝固組織の計算領域と境界条件

図3 初期凝固組織形成過程の濃度分布の時間変化

うになる。この他にも第三元素添加の影響等をフェーズフィールド法を用いて解析することができる。

3.2 鋼の包晶凝固組織予測²⁷⁾

鋼の包晶反応／変態の結果、引張り応力が生じて初期凝固シェルの表面割れなどに繋がる事が報告されている。これまで、系を一次元でモデル化し包晶変態に冷却速度や拡散係数が与える影響が調べられてきた。本研究ではフェーズフィールド法を用いて、包晶反応速度に対して界面エネルギーが与える影響を評価した。

系は Fe-0.15 mol%C とする。計算領域はデンドライト一次枝幹の横断面を想定して 140×140 μm とし冷却速度は 300 K/s、γ相核は包晶濃度を最初に超えた領域に生成すると仮定した。

図5に包晶凝固過程を示す。δ初相がデンドライト様に成長した後、一次枝幹付近にγ相が晶出し、固液界面に沿って成長する。ここで、γ相がδ相を覆う包晶反応速度は液相中の拡散律速なので 1 mm/s を超える。包晶反応速度は3重点がδ/L界面を移動する速度として求めた。一方、δ固相が被覆されたあとは、γ固相内拡散が

図4 初期凝固組織に与える優先成長方位傾きの影響

図5 包晶凝固プロセス

	$\sigma_{\delta\gamma}$	$\sigma_{\gamma L}$	$(\sigma_{\delta\gamma} \cdot \sigma_{\gamma L})^{-1}$
(a)	1	1	1
(b)	1.5	1.5	0.44
(c)	1	1.5	0.67
(d)	1.5	1	0.67
(e)	2.0	2.0	0.25

図6 界面エネルギーが包晶反応過程に与える影響

包晶変態を律速するため γ 相成長速度が低下する。

図6に界面エネルギーが包晶反応に与える影響を示す。 $\sigma_{\delta L}$ の変更は計算結果に影響を及ぼさなかったため γ 相に関連した結果のみ示してある。図6(a)-(e)は、同じ温度(時間経過)のスナップショットであるが、図からも明らかなように界包晶反応速度が $\sigma_{\delta\gamma}$, $\sigma_{\gamma L}$ によって変化している。其々の反応速度を調査したところ $(\sigma_{\delta\gamma} \cdot \sigma_{\gamma L})^{-1}$ に比例している事が分った。包晶反応は δ/γ 界面が消滅して、 δ/γ と γ/L 界面が生成される反応であることから、新たに作られる界面の界面エネルギーの大きさと成長速度が反比例するのは妥当であると考えられる。

4. 最後 に

本稿では、フェーズフィールド法の紹介と鋼への適用例を示した。フェーズフィールド法は凝固に限らず固相変態や再結晶過程など様々な系に対し使われている。初期凝固組織解析で示した通り、2次元、2元系、2相系(固・液相)で温度場-濃度場連成させた凝固計算をする場合、最新の1CPUを用いて数日以内に計算が終えるという条件下では、計算可能領域は数百 μm を限度となる。包晶凝固のように対象相を1つ増やした場合や3成分系に拡張した場合、それぞれ2~3割程度の計算時間の増加になる。一方、3次元に系を拡張した場合は、ほぼ拡張した軸に割り当てた計算メッシュ数の倍数分の時間が増加するため、並列計算やGPGPUの適用が必須となる。

フェーズフィールド法で溶接部の凝固マイクロ組織形成過程を予測する場合、計算時間の制約から、溶融部全体を計算することは難しい。しかし、数本のデンドライト

が含まれる領域しか計算できなくとも、最終凝固部付近での溶質偏析への合金元素の影響などの情報を得る事は可能である。シュミレーションに限った事ではなく、目的の知見を得る為に現象をモデル化することはどんな問題でも重要である。

本稿を読んで興味をもった読者が実際にフェーズフィールドシュミレーションを試してみる切っ掛けとなれば幸いである。

参考文献

- 1) 平田好則：アーク溶接現象のシュミレーションの現状，溶接技術，4 (2010)，46.
- 2) 奥本泰久：シュミレーション技術を使った設計・生産の高度化，4 (2010)，50.
- 3) 村山元，及川初彦：スポット溶接シュミレーション技術の現状，溶接技術，3 (2011)，70.
- 4) 例えば SYSWELD，
<http://www.esi.co.jp/products/sysweld.html>
- 5) 大中逸雄：鑄造シュミレーションの最近の動向，鑄造工学，78 (2006)，602.
- 6) S. G. R. Brown and J. A. Spittle: Computer-Simulation of Grain-Growth and Macrostructure Development during Solidification, Mater. Sci. Tech., 5 (1989) 362.
- 7) J. A. Spittle and S. G. R. Brown: Computer-Simulation of the Effects of Alloy Variables on the Grain Structures of Castings, Acta Metall., 37 (1989) 1803.
- 8) M. Rappaz and C. A. Gandin: Probabilistic Modeling of Microstructure Formation in Solidification Processes, Acta Metall. Mater., 41 (1993) 345.
- 9) C. A. Gandin and M. Rappaz: A Coupled Finite-Element Cellular-Automaton Model for the Prediction of Dendritic Grain Structures in Solidification Processes, Acta Metall., 42 (1994) 2233.
- 10) L. Nastac: Numerical modeling of solidification morphologies and segregation patterns in cast dendritic alloys, Acta Mater., 47 (1999) 4253.
- 11) 高木知弘，山中晃徳：フェーズフィールド法の基礎と応用，機械の研究，61-3 (2009)，353 より連載
<http://www.cis.kit.ac.jp/~takaki/phase-field.html>
- 12) 小林亮：フェーズフィールド法のおもしろさ，計算工学，15-2 (2010) 3，高木知弘：Phase-field 法の基礎，計算工学 15-2 (2010)，7，小山敏幸：フェーズフィールド法のおもしろさ，計算工学 15-2 (2010)，12，大野宗一，松浦清隆：合金凝固のフェーズフィールドモデル，計算工学 15-2 (2010)，16.
- 13) 小山敏幸：フェーズフィールド法の発展史と最近の話題，金属 80-2 (2010)，5，大野宗一，松浦清隆：フェーズフィールド法における界面移動の記述，金属 80-2 (2010)，11，大出真知子：フェーズフィールド法と CALPHAD 法の連携について，金属 80-2 (2010)，17.
- 14) M. Ode, S. G. Kim and T. Suzuki: Recent advances in the phase-field model for solidification, ISIJ Int., 41 (2001), 1076.
- 15) W. J. Boettinger, J. A. Warren, C. Beckermann and A. Karma: phase-field simulation of solidification, Ann. l Rev. Mat. Res. 32 (2002), 163.
- 16) L. Q. Chen, Phase-field models for microstructure evolution, Ann. l Rev. Mat. Res. 32 (2002), 113.
- 17) I. Steinbach: Phase-field models in materials science, Model. Simul. Mater. Sci. Eng. 17 (2009), 073001.
- 18) MICRESS, <http://www.engineering-eye.com/MICRESS/>
- 19) S. G. Kim: A phase-field model with antitrapping current for multicomponent alloys with arbitrary thermo-

- dynamic properties, *Acta Mater.*, 55 (2007), 4391.
- 20) K. Oguchi and T. Suzuki: Accuracy and Computational Efficiency of Phase-field Models, *Isij Int.*, 49 (2009), 1536.
 - 21) S. G. Kim, W. T. Kim and T. Suzuki: Phase-field model for binary alloy *Phys. Rev. E*, 60 (1999), 7186.
 - 22) A. Karma: Phase-Field Formulation for Quantitative Modeling of Alloy Solidification, *Phys. Rev. Lett.* 87 (2001), 115701.
 - 23) M. Ohno and K. Matsuura: Quantitative phase-field modeling for dilute alloy solidification involving diffusion in the solid, *Phys. Rev. E*, 79 (2009), 031603.
 - 24) 大野宗一：合金の組織形成過程のフェーズフィールドシミュレーション, *まてりあ*, 48-7 (2009), 375.
 - 25) M. Ode and T. Suzuki: Numerical simulation of initial microstructure evolution of Fe-C alloys using a phase-field model, *Isij Int.* 42 (2002) 368.
 - 26) 大出真知子：フェーズフィールドシミュレーション入門, *鑄造工学*, 73-5 (2001) 335.
 - 27) M. Ode, S. G. Kim, W. T. Kim and T. Suzuki: Numerical simulation of peritectic reaction in Fe-C alloy using a multi-phase-field model Article, *Isij Int.*, 45 (2005) 147.