Fe-C 合金における Widmanstätten フェライト形成過程の Phase-field シミュレーション*

山中晃徳^{*1}, 高木知弘^{*2}, 富田佳宏^{*3}

Phase-field Simulation of Widmanstätten Ferrite Formation in Fe-C Alloy

Akinori YAMANAKA^{*4}, Tomohiro TAKAKI and Yoshihiro TOMITA

^{**} Graduate School of Science and Technology, Kobe University,
1-1 Rokkodai-cho, Nada-ku, Kobe-shi, Hyogo, 657-8501 Japan

Phase-field simulations of Widmanstätten ferrite formation during isothermal austenite-to-ferrite transformation in Fe-C alloys are carried out. The effects of the anisotropy of interfacial properties on the formation process of Widmanstätten ferrite are studied by the regularized gradient coefficient method in order to introduce strong anisotropy of the interface. The results suggest that the lengthening rate of the ferrite plate decreases with increasing interfacial energy because the growth rate to the broad side increases. With the constant interfacial energy at the broad side of the plate, the increase of the strength of anisotropy causes faster tip velocity and the formation of fine tips. Furthermore, simulation results clarified that the realistic morphology of Widmanstätten ferrite plate can be represented by using the regularized gradient coefficient method and that strong anisotropy of the interface is required for the formation of Widmanstätten ferrite plates from allotriomorph ferrite.

Key Words: Phase-field Method, Phase Transformation, Widmanstätten Ferrite, Interface Anisotropy, Fe-C Alloy, Diffusion, Iron and Steel, Computational Mechanics

1. 緒 言

鉄鋼材料は Ae3 温度以下の広範な温度領域において、オーステナイト (γ) 相からフェライト (α) 相への相変態 ($\gamma \rightarrow \alpha$ 変態) が発生し、様々な因子の影響を受けて多様な微視組織形態を形成する⁽¹⁾。 $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態で生成する α 相として、Ae3 温度直下では γ 粒界に沿って楕円状の Allotriomorph フェライトが生成し、過冷度が増加すると α/γ 界面からラス状もしくはプレート状の Widmanstätten フェライトが生成する^{(2)~(8)}。Widmanstätten フェライトは、例えば、鉄鋼材料の溶接部の熱影響領域で多く観察され材料の靱性に大きく影響することなどが知られている⁽²⁾。したがって、 $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態機構および Widmanstätten フェライトなどのプレート状 α 相組織の形成過程を理解することは、鉄鋼材料の機械的性質の向上や新たな鉄鋼材料を創製する上で

非常に重要である。しかしながら、Widmanstätten フェライトの形成機構については、Allotriomorph フェライトの α/γ 界面における核生成が支配的であるとする見解⁽⁵⁾や界面の形態不安定性⁽⁶⁾で説明可能であるとの見解^{(7)~(8)}などがあるが、未だ統一した形成メカニズムは明らかにされていない。さらに、 $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態は界面移動と固溶元素の拡散挙動の競合現象であり、特に比較的高温領域においては、炭素原子の拡散が非常に速く、実験的手法のみで相変態過程を把握することは非常に困難である。

そのため、これまでに多くの $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態モデル^{(9)~(12)}や α 相のプレート状成長モデルが提案されているが、これらのモデルは変態による界面移動と化学組成変化を個別に求めなければならないうえ、複雑な組織形成過程まで再現することはできない。

これに対し近年、界面領域を秩序変数の連続的变化として表現し、比較的簡単な支配方程式を解くことで、変態挙動および複雑な組織形成過程を表現できる Phase-field 法が提案され、様々な組織形成過程の解析手法として注目を浴びている^{(13)~(17)}。鉄鋼材料における組織形成過程の Phase-field モデルに関しては、Loginova らが

* 原稿受付 2006 年 3 月 16 日。

^{*1} 学生員、神戸大学大学院自然科学研究科 (〒657-8501 神戸市灘区六甲台町 1-1)。

^{*2} 正員、神戸大学海事科学部 (〒658-0022 神戸市東灘区深江南町 5-1-1)。

^{*3} 正員、神戸大学工学部。

E-mail: yamanaka@solid.mech.kobe-u.ac.jp

Fe-C 合金の $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態モデル⁽¹⁸⁾を提案し、またそのモデルを拡張して Widmanstätten フェライト形成モデル⁽¹⁹⁾を構築した。しかしながら、Loginova らのモデルでは実験で観察されるような非常に鋭い Widmanstätten フェライトの先端形状を再現できない。そこで本研究では、Loginova らのモデルでは表現できなかった鋭いプレート先端形状を有する Widmanstätten フェライトの形成過程を再現可能な、Phase-field モデルを構築する。また、数値シミュレーションを行うことで、より現実に近い組織形態をもつ Widmanstätten フェライトの形成過程をシミュレートし、界面異方性に関する各因子が組織形成過程に及ぼす影響を評価する。

2. Phase-field モデル

本研究では文献 (19) で提案された、Fe-C 合金の $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態による Widmanstätten フェライト形成モデルに、非常に強い界面異方性を導入できる勾配エネルギー係数を導入することで、より現実に近い Widmanstätten フェライトの形態とその形成過程を再現可能なモデルを構築する。

2.1 支配方程式 本モデルにおいて α 相の存在確率を表す phase field ϕ と炭素濃度 u_c を秩序変数とする。Phase field ϕ は α 相において $\phi = 1$ 、 γ 相において $\phi = 0$ の値をとり、界面領域において滑らかに変化する。一方、 u_c は鉄原子 1mol 当たりの炭素原子の mol 数として表される炭素濃度であり、通常の炭素原子のモル分率 x_c 、副格子濃度 y_c を用いて以下のように定義される。

$$y_c = \frac{ax_c}{c(1-x_c)} = \frac{a}{c}u_c \quad (1)$$

ここで a と c は Fe 原子の格子点に対する炭素原子が占有する副格子点のサイト数の比率であり、 α 相においては $a = 1, c = 3$ 、 γ 相においては $a = c = 1$ となる⁽²⁰⁾。

Fe-C 合金の全自由エネルギーは、化学的自由エネルギーと界面が存在することによって生じる過剰なエネルギーの和として、次式に示す Gibbs の自由エネルギー汎関数を用いる。

$$G = \int \left[g(\phi, u_c, T) + \frac{\varepsilon(\theta)^2}{2} |\nabla \phi|^2 \right] dV \quad (2)$$

ここで、 T は絶対温度、 $\varepsilon(\theta)$ は界面の異方性を表現する勾配エネルギー係数であり、次節で詳細に説明する。式 (2) の被積分関数第 1 項の $g(\phi, u_c, T)$ は、Fe-C 合金の化学的自由エネルギー密度であり相変態に伴う自由エネルギー変化を表現するため、次式で表される。

$$g(\phi, u_c, T) = p(\phi)g^\alpha(u_c, T) + (1 - p(\phi))g^\gamma(u_c, T) + Wq(\phi) \quad (3)$$

ここで、 $g^\alpha(u_c, T)$ と $g^\gamma(u_c, T)$ は、それぞれ α 相と γ 相単相の自由エネルギー密度である⁽²¹⁾。また、エネルギー密度分布関数 $p(\phi)$ 、ダブルウェルポテンシャル $q(\phi)$ はそれぞれ次式を採用する。

$$p(\phi) = \phi^3(10 - 15\phi + 6\phi^2) \quad (4)$$

$$q(\phi) = \phi^2(1 - \phi)^2 \quad (5)$$

式 (3) のエネルギー障壁の高さ W は、界面エネルギー σ と界面幅 δ を用いて $W = 6\sigma b/\delta$ のように関係付けられる。本研究では、界面領域を $\lambda \leq \phi \leq 1 - \lambda$ と仮定して、 $b = 2 \tanh^{-1}(1 - 2\lambda)$ としている⁽²²⁾。 λ は例えば 0.05 や 0.1 のような界面領域入口の ϕ の値である。

ϕ と u_c の時間発展方程式は、系の状態は自由エネルギーの減少率が最大になるように変化すると仮定⁽¹⁴⁾⁽²³⁾に基づき導出する。非保存量である phase field ϕ の時間発展方程式は Allen-Cahn 方程式から導出される。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi}{\partial t} = M_\phi & \left\{ \nabla \cdot (\varepsilon(\theta)^2 \nabla \phi) - \frac{\partial g}{\partial \phi} \right. \\ & \left. - \frac{\partial}{\partial x} \left(\varepsilon(\theta) \frac{\partial \varepsilon(\theta)}{\partial \theta} \frac{\partial \phi}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\varepsilon(\theta) \frac{\partial \varepsilon(\theta)}{\partial \theta} \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) \right\} \end{aligned} \quad (6)$$

$$\frac{\partial g}{\partial \phi} = 4W\phi(1 - \phi) \left(-\frac{15}{2W}\phi(1 - \phi)\Delta g^{\gamma\alpha} + \phi - \frac{1}{2} \right) \quad (7)$$

$$\Delta g^{\gamma\alpha} = g^\gamma(u_c, T) - g^\alpha(u_c, T) \quad (8)$$

ここで、 M_ϕ は α/γ 界面の易動度 $M^{(24)}$ 、 W および ε に関係付けられるパラメータであり次式で表される。

$$M_\phi = \frac{\sqrt{2W}}{6\varepsilon_0} M = \frac{\sqrt{2W}}{6\varepsilon_0} \cdot 0.035 \exp\left(\frac{-17700}{T}\right) \quad (9)$$

一方、保存量である炭素濃度 u_c の時間発展方程式は Cahn-Hilliard 方程式から導出される。

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_c}{\partial t} = \nabla \cdot & \left\{ L'(\phi, u_c, T) \nabla \left(\frac{\delta G}{\delta u_c} \right) \right\} \\ = \nabla \cdot & \left\{ L'(\phi, u_c, T) \left(\frac{\partial^2 g}{\partial u_c^2} \nabla u_c + \frac{\partial^2 g}{\partial u_c \partial \phi} \nabla \phi \right) \right\} \end{aligned} \quad (10)$$

$$L'(\phi, u_c, T) = u_c \gamma_v \nu_m M_c \quad (11)$$

ここで、 $L'(\phi, u_c, T)$ は Fe-C 合金中の炭素原子の拡散係数を表す⁽²⁵⁾。 ν_m はモル体積、 γ_v は炭素原子が占有していない副格子、すなわち空格子のモル分率であり、 α 相では $\gamma_v = 1 - u_c/3$ 、 γ 相では $\gamma_v = 1 - u_c$ で表される。よって、 γ_v が相の種類に依存して、界面領域で滑らかに変化することを表現するために次式を仮定する。

$$u_c \gamma_v = p(\phi)u_c \left(1 - \frac{u_c}{3} \right) + (1 - p(\phi))u_c(1 - u_c) \quad (12)$$

Fig. 1 Interface anisotropy for $k=2$, $\xi=0.6$, $\theta_0=90^\circ$; (a) polar plot of anisotropy function $\eta(\theta)$ and (b) equilibrium shape of interface.

また、 M_c は炭素原子の易動度であり、 α 相における炭素原子の易動度は γ 相に比べて約 100 倍大きい。したがって、 M_c が界面領域で滑らかに変化するように、 α 相における易動度 M_c^α 、および γ 相における易動度 M_c^γ を用いて次式で表す⁽²⁶⁾⁽²⁷⁾。

$$M_c = (M_c^\alpha)^{p(\phi)} (M_c^\gamma)^{(1-p(\phi))} \quad (13)$$

2.2 界面異方性 $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態により生成する α 相の組織形成過程は、 α/γ 界面構造に依存して変化する界面エネルギーの異方性に大きく影響を受ける。本研究では、このような界面異方性を表現するために、勾配エネルギー係数 $\varepsilon(\theta)$ を界面エネルギー σ と界面厚さ δ および異方性関数 $\eta(\theta)$ を用いて次式で定義する。

$$\varepsilon(\theta) = \varepsilon_0 \eta(\theta) = \sqrt{\frac{3\sigma\delta}{b}} \eta(\theta) \quad (14)$$

ここで、 θ は界面の方向を示しており、界面の法線方向と x 軸のなす角度として定義する。また、異方性関数 $\eta(\theta)$ は次式を採用する。

$$\eta(\theta) = 1 + \xi \cos k(\theta - \theta_0) \quad (15)$$

ここで、 ξ , k , θ_0 はそれぞれ異方性強度、異方性モード数、優先成長方向である。

図 1(a) に $\xi=0.6$, $k=2$, $\theta_0=90^\circ$ における $\eta(\theta)$ の極座標プロットを実線で示す。この $\eta(\theta)$ により得られる平衡形は、Wulff の定理⁽²⁸⁾ により図 1(b) のようになる。本研究では文献 (19) では表現できなかった、鋭い先端形状を有する Widmanstätten フェライトの形成過程をシミュレートし、より現実に近い組織形態を再現するため

Fig. 2 Simulation model and initial conditions.

に、このような強い異方性を導入するが、 $\xi \geq 1/(k^2 - 1)$ を満たす異方性強度 ξ を用いた場合、図 1(b) 中の (A) で示すような、界面の平衡形状において不連続な部分が発生する。この部分に対応する θ の領域は図 1(a) の灰色部分で表され、式 (15) を用いた場合、界面の平衡形を表現できない。そこで本研究では、この θ の範囲 $2\pi i/k - \theta_m \leq \theta - \theta_0 \leq 2\pi i/k + \theta_m$ ($i=0, 1, 2, \dots$) に対して、次式に示すように $\eta(\theta)$ を修正することで、強い界面異方性をモデル化する⁽²⁹⁾⁽³⁰⁾。

$$\eta(\theta) = \begin{cases} 1 + \xi \cos k(\theta - \theta_0) \equiv \bar{\eta}(\theta) & (\text{for } 2\pi i/k + \theta_m \leq \theta - \theta_0 \leq 2\pi(i+1)/k + \theta_m) \\ \frac{\bar{\eta}(\theta_m + \theta_0)}{\cos \theta_m} \cos(\theta - \theta_0) & (\text{for } 2\pi i/k - \theta_m \leq \theta - \theta_0 \leq 2\pi i/k + \theta_m) \end{cases} \quad (16)$$

ここで、 θ_m は図 1(a) に示すように、式 (15) の極座標プロットと破線で示す半径 $\bar{\eta}(\theta_m + \theta_0)/\cos \theta_m$ の内接円の接点における角度から y 軸までの角度領域の大きさに対応し、以下の式で求めることができる。

$$\eta(\theta_m) \sin \theta_m + \eta(\theta_m) \cos \theta_m = 0 \quad (17)$$

なお、式 (16) の計算は、 $k=2$ においては $\xi=0.33$ 以上、 $k=4$ においては $\xi=0.06$ 以上の異方性強度が必要となる。

3. 解析モデルおよび解析手法

図 2 に本研究で用いる解析モデルおよび初期条件を示す。温度 $T=1000\text{K}$ の等温 $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態による Widmanstätten フェライト形成過程をシミュレートするため、解析領域を $DX \times DY = 0.21 \times 0.86 \mu\text{m}$ の長方形領

Fig. 3 The growth of Widmanstätten ferrite in $k = 2$, $\sigma = 0.6 \text{ J/m}^2$ and $\xi = 0.6$

域, 優先成長方向を $\theta_0 = 90^\circ$ とする. 境界条件は phase field ϕ , 炭素濃度 u_c ともに解析領域端で零ノイマン条件とする. また, 初期 α 相は半径 $r = 3\text{nm}$ の円形とし, 解析領域の原点位置に配置する. これに合わせて phase field ϕ の初期分布を界面領域で滑らかに変化するように与える. このとき, 界面幅 $\delta = 6dx = 20\text{nm}$ としている. 各相の初期炭素濃度は, 初期 α 相においては平衡組成 $u_c = 0.002$, γ 相においては α 相の平衡組成に対して過飽和状態 $u_c = 0.02$ とする. また, Fe-C 合金のモル体積は α 相と γ 相で等しいと仮定し $v_m = 7.0 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}$ とする. 界面異方性のパラメータは, 特に述べない限り, 異方性モード数 $k = 2$, 異方性強度 $\xi = 0.6$, 界面エネルギー $\sigma = 0.6 \text{ J/m}^2$ とする.

式 (6) および式 (10) に示す支配方程式を, 時間に関してはクラנק・ニコルソン中央差分法, 空間に対しては, 4 節点アイソパラメトリック要素を用いた有限要素法を用いて離散化する.

さらに本研究では, 数値シミュレーションを効率的に行うために, 界面近傍に細かい要素を用い, それ以外の領域では粗い要素を用いるアダプティブメッシュ法⁽²²⁾を採用する. 要素細分化の条件は, $0.01 \leq \phi_{ave} \leq 0.9$ または $|\nabla u_c|_{ave} \geq 0.3$ であり, これ以外の条件を満たす場合には要素を粗大化する. また, 要素サイズのレベル数は 6 とし, 最小要素と最大要素のサイズ比は 1 : 32 である. このとき, 界面領域においては最小有限要素サイズ $dx = dy = 3.3 \times 10^{-3} \mu\text{m}$ としている.

4. 解析結果

4.1 単一の Widmanstätten フェライト形成過程

本節では, 一連の数値シミュレーションを行うことにより, 単一の Widmanstätten フェライトの形態および形成過程に界面異方性に関する各因子が与える影響を

Fig. 4 The growth of ferrite in $k = 4$, $\sigma = 1.0 \text{ J/m}^2$ and $\xi = 0.3$.

詳細に検討する.

4.1.1 異方性モード数の影響 異方性モード数 k が α 相形態と形成過程に及ぼす影響について検討する. 図 3 に異方性モード $k = 2$, 異方性強度 $\xi = 0.6$ における α 相形態と炭素濃度分布の時間変化を示す. 図 3 中の炭素濃度が低い白色領域が α 相であり, α/γ 界面の界面エネルギーは $\theta = 90^\circ$ 方向で最大値 0.83 J/m^2 , $\theta = 0^\circ$ 方向で最小値 0.24 J/m^2 となる. これは, それぞれ非整合界面および部分整合界面に対応する界面エネルギー値である⁽³¹⁾.

円形の初期形状を有する α 相は, 全体のエネルギーを減少させるように形態を変化させ, 時間の経過とともに界面エネルギーの大きい $\theta = 90^\circ$ 方向への成長が速くなり, プレート形状の α 相すなわち Widmanstätten フェライトを形成する. また, Widmanstätten フェライトは成長初期段階から, 強い界面異方性により文献 (3) や文献 (32) で観察されるような鋭いチップ形状を有していることがわかる.

$\gamma \rightarrow \alpha$ 変態による α 相の生成過程においては, 新たに生成した α 相の最大固溶限を超える炭素原子は炭素固溶度の大きい母相の γ 相へと拡散するが, γ 相における炭素原子の易動度は α 相に比べて極めて小さいため, 界面前方の γ 相で炭素濃度が増大する. 界面エネルギーが最小となる $\theta = 0^\circ$ 方向では, 変態駆動力が小さいため界面移動が抑制され, 界面前方の γ 相で炭素原子が堆積しやすい. このような, 界面付近の γ 相における炭素濃度の増加は, 変態駆動力を減少させるため界面移動をさらに抑制する. 一方, 界面エネルギーが最大となる $\theta = 90^\circ$ 方向では, 変態駆動力が大きいいため, 界面の移動速度が大きくなり界面前方の炭素原子の堆積量が減少する. すなわち, 界面エネルギーの異

Fig. 5 The effects of interfacial energy on the growth of Widmanstätten ferrite for (a) $\sigma = 0.6$, (b) $\sigma = 0.8$ and (c) $\sigma = 1.0$ J/m² at 500 μ s.

方向により、各方向への界面移動速度が変化することに応じて、炭素原子の堆積量が大きく変化することがわかる。

次に、異方性モード $k = 4$ 、異方性強度 $\xi = 0.3$ 、界面エネルギー $\sigma = 1.0$ J/m²、における α 相形態と炭素濃度分布の時間変化を図 4 に示す。ここでは解析領域を $DX \times DY = 1.0 \times 1.0 \mu\text{m}$ としている。異方性モード $k = 4$ の場合においても、時間が経過するにつれて、 α 相は γ 相への炭素拡散を伴いながら成長する。しかしながら、界面エネルギーの最大値が現われる $\theta = 0^\circ$ および $\theta = 90^\circ$ 方向に速く成長し、界面前方において炭素原子が多く堆積している。さらに、 $k = 2$ の場合に比べて鋭い先端形状が形成されず、プレート状 α 相へと成長しないことがわかる。

以上の結果から、Fe 系合金は立方晶であるため異方性モード数 $k = 4$ を用いるのが一般的であるが、Widmanstätten フェライトの形成過程を再現するためには、プレート状 α 相の成長過程において鋭い先端形状を形成するような、より強い界面異方性を表現できる異方性モード数 $k = 2$ を用いる必要があることがわかる。

4.1.2 界面エネルギーの影響 図 5 に界面エネルギー $\sigma = 0.4, 0.8$ および 1.0 J/m² における、500 μ s での Widmanstätten フェライトの形態と炭素濃度分布を示す。また、図 6(a) に各界面エネルギーにおけるチップ先端位置の時間変化とプレートの定常成長速度 V を示す。異方性強度を一定にした場合、界面エネルギーの増加は系全体のエネルギーの増大をもたらすが、図 5 と

Fig. 6 The effects of interfacial energy (a) on the tip velocity and distribution of carbon concentration for (b) $\sigma = 0.6$, (c) $\sigma = 0.8$ and (d) $\sigma = 1.0$ J/m² at 500 μ s.

図 6(a) より、界面エネルギーが大きくなるほど、優先成長方向への成長は抑制されることがわかる。これは、合金の過冷却凝固などの Phase-field シミュレーション結果とは相反する結果である。このような現象を説明するために、各界面エネルギーにおいて、図 6 に示すようなチップ先端位置から距離 $l = 0.13 \mu\text{m}$ 離れた A-A' 断面の炭素濃度分布をそれぞれ図 6(b)~(d) に示す。 α/γ 界面付近の炭素濃度分布は同様であるが、界面エネルギーが増加するほど、 α 相は $\theta = 0^\circ$ 方向への成長を促進していることがわかる。すなわち、界面エネルギーの増加により系の自由エネルギーは増大するが、界面エネルギーの大きな優先成長方向への成長は抑制されるのは、チップ付近で $\theta = 0^\circ$ 方向への成長が促進することで系のエネルギーを減少させるためであることが示唆される。この結果は、文献 (19) において異方性強度が増加するほど、プレートチップ径が小さくなるとのシミュレーション結果と定性的に対応する結果である。

さらに、図 6(a) に示すプレート成長速度 V は、文献 (19) の数値シミュレーションで得られたプレート成長速度とほぼ一致しているが、実験結果⁽⁸⁾⁽³³⁾ に比して大きい。しかしながら、数値シミュレーションにおいて界面幅 δ を現実に近い数 nm 程度に設定することで、プレート成長速度は実験結果と比較可能な値になると考えられる。

4.1.3 異方性強度の影響 図 7 に異方性強度 $\xi = 0.3 \sim 0.6$ の場合において、 y 軸方向の長さが $0.5 \mu\text{m}$ まで成長した Widmanstätten フェライト相の形態と炭

Fig. 7 The effects of strength of anisotropy on the growth of Widmanstätten ferrite and carbon concentration profile along y axis for (a) $\xi = 0.3$, (b) $\xi = 0.4$, (c) $\xi = 0.5$ and (d) $\xi = 0.6$.

素濃度分布, および y 軸上の炭素濃度プロファイルを示す。ここでは, $\theta = 0^\circ$ 方向の界面エネルギーが 0.25 J/m^2 で一定となるように σ を設定している。界面エネルギーが大きくなるにつれて, チップ先端形状は鋭くなることからわかる。また, 異方性強度の増加に伴って界面の移動速度が大きくなるため, Solute-trapping が生じ, γ 相から α 相への炭素拡散は抑制される。したがって, 図 7 に示すように, チップ先端の γ 相における炭素濃度の増加量が減少していることがわかる。さらに, 図 8 に各異方性強度におけるプレート先端位置の時間変化を示す。異方性強度が増大するにつれて, チップ近傍の界面エネルギーが大きくなるため, 優先成長方向の成長速度は増加し, 特に $\xi = 0.5$ や 0.6 の場合にはチップ先端の γ 相において炭素濃度が増大せず, これがさらに大きな成長速度を示す要因になっていることがわかる。

以上の結果から, 異方性強度の増大によりチップ近傍の界面エネルギーが $\theta = 0^\circ$ 方向に比べて大きな

Fig. 8 The effects of strength of anisotropy on the tip velocity.

ため, 優先成長方向への界面移動速度を増大させ, より鋭いチップ形状が形成することがわかる。

4.2 複数の Widmanstätten フェライトの生成挙動
本節では, Allotriomorph フェライトの α/γ 界面から複数本の Widmanstätten フェライトプレートが形成する過程を数値シミュレーションで評価し, プレート間の相互作用および組織形成過程に及ぼす界面異方性の影響について詳細に検討する。ここでは, 解析領域を $1.0 \times 1.0 \mu\text{m}$ に拡大し, 平滑な界面を有する初期 α 相を x 軸上に配置するが, その他の解析条件は前節と同様である。

界面エネルギー $\sigma = 1.0 \text{ J/m}^2$ 一定, 異方性強度 $\xi = 0.4$ および 0.6 における Widmanstätten フェライト形成過程を図 9(a) と (b) にそれぞれ示す。異方性強度 $\xi = 0.4$ において, 初期に平滑な界面形状を有する α 相は時間の経過とともに, 組織全体の界面エネルギーを減少させるように形態を変化させ, α/γ 界面に多数の小さな三角形状のチップを形成する ($80 \mu\text{s}$)。その後, チップは融合を繰り返して大きくなり, チップ数は減少する ($150, 300 \mu\text{s}$)。しかしながら, 異方性強度が小さいために $\theta = 90^\circ$ 方向への成長が遅く, 鋭い先端形状は形成されない。また, チップ前方に炭素原子が堆積し, α 相の成長は抑制されるため, 一方向に大きく成長したプレート状 α 相は形成されないことがわかる ($600, 880 \mu\text{s}$)。

一方, 異方性強度 $\xi = 0.6$ の場合は, $\xi = 0.4$ の場合よりも鋭いチップ先端形状の形成と融合が生じる ($1 \sim 250 \mu\text{s}$)。その後, チップはプレート状 α 相へと形態を変化させるが, 初期成長段階において, 周囲よりも優先成長方向に大きく成長したプレートが形態不安定性により選択的に成長を続けることがわかる ($250 \sim 700 \mu\text{s}$)。さらに, プレート状 α 相は互いに競合

Fig. 9 Growth of Widmanstätten ferrite plates in (a) $\xi=0.4$ and (b) $\xi=0.6$.

的に成長しながら、複数の Widmanstätten フェライトプレートが形成していくことがわかる (700~1000 μ s). このとき、プレート間に挟まれた γ 相においては、炭素濃度が高くなるため、未変態のまま残留している。

以上の結果より、平滑な界面を有する Allotriomorph フェライトから Widmanstätten フェライトプレートが形成するためには、鋭い先端形状を形成するような強い界面異方性が必要であることがわかる。さらに、本シミュレーションで得られた Widmanstätten フェライトの初期成長段階における形成過程は、 α/γ 界面の形態不安定性で説明できることを示すものである。

5. 結 言

本研究では、Fe-C 合金における Widmanstätten フェライトの形成過程をシミュレート可能な Phase-field モデルを構築し、数値シミュレーションを行うことにより、Widmanstätten フェライトの形態とその形成過程に界面異方性の各因子が与える影響を検討した。以下に得られた結果を示す。

1. Widmanstätten フェライトの形成過程をシミュレートするためには、プレート状 α 相の生成過程において鋭い先端形状を形成するような、強い界面異方性を表現できる異方性モード $k=2$ を用いる必要がある。
2. 界面異方性を表す勾配エネルギー係数に、強い異方性を表現できる修正勾配エネルギー係数を適用したことにより、鋭いプレート先端形状を表現可能にし、より現実に近い Widmanstätten フェライトの組織形態を再現することができた。
3. 異方性強度が一定の場合は、界面エネルギーが増

加するほどチップ付近の界面エネルギーは増加するにもかかわらず、優先成長方向への α 相の成長が抑制されるのは、 $\theta=0^\circ$ 方向の界面エネルギーが増加し、プレートの横方向への成長と炭素拡散を促進するためである。

4. 異方性強度が α 相形態および成長過程に及ぼす影響を検討した結果、異方性強度の増加は、チップ付近の界面エネルギーが $\theta=0^\circ$ 方向の界面エネルギーに比して、より大きくなるため優先成長方向の成長が促進され、より鋭い先端形状を形成することがわかる。
5. 平滑な界面を有する Allotriomorph フェライトから複数の Widmanstätten フェライトプレートが形成する過程を検討した結果、強い界面異方性により生成されたチップ先端は融合を繰り返した後、成長初期段階において界面の形態不安定性により、選択的にプレート状に成長することを示した。

以上のように、本研究ではより現実に近い組織形態を有する Widmanstätten フェライトの初期形成過程を Phase-field 法と修正勾配エネルギー係数を用いた数値シミュレーションにより再現可能にし、組織形成過程に及ぼす界面異方性の影響を明らかにすることができた。今後は、解析領域を拡大し、実際に観察されるスケールの Widmanstätten フェライトの形態形成などをより詳細に解析することを課題にしたい。

文 献

- (1) Tanino, M et al., *Science of Steels*, (2001), p.78, Uchida Rokokuho Publishing Co., Ltd. (In Japanese)
- (2) Yang, J.R. and Chang, L.C., The effect of stress on the Widmanstätten Ferrite Transformation, *Materials Science*

- and Engineering A, Vol.223, No.2 (1997), pp.158-167.
- (3) Ohmori, Y. et al., Morphology of Bainite and Widmanstätten Ferrite, *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol.25A, No.9 (1994), pp.1981-1989.
 - (4) Ohmori, Y., Microstructural Evolution with Precipitation of Carbides in Steels, *ISIJ International*, Vol.41, No.6 (2001), pp.554-565.
 - (5) Aaronson, H.I. et al., Sympathetic Nucleation : An Overview, *Materials Science and Engineering B*, Vol.32, No.3 (1995), pp.107-123.
 - (6) Mullins, W. W. and Sekerka, R. F., Stability of a Planar Interface During Solidification of a Dilute Binary Alloy, *Journal of Applied Physics*, Vol.35, No.2 (1964), pp.444-451.
 - (7) Aaronson, H.I. et al., The Widmanstätten-start (Ws) Temperature, as Affected by Matrix grain size, in Ti-6 % Al-4 % V and Fe-C Alloys, *Scripta Metallurgica*, Vol.23, No.3 (1989), pp.435-440.
 - (8) Enomoto, M., Thermodynamics and Kinetics of the Formation of Widmanstätten Ferrite Plates in Ferrous Alloys, *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol.25A, No.9 (1994), pp.1947-1995.
 - (9) Christian, J. W., *The Theory of Transformation in Metals and Alloys*, 2nd ed., (1981), p.476, Pergamon, Oxford.
 - (10) Zener, C., Theory of Growth of Spherical Precipitates from Solid Solution, *Journal of Applied Physics*, Vol.20, No.10 (1949), pp.950-953.
 - (11) Enomoto, M., Prediction of TTT-diagram of Proeutectoid Ferrite Reaction in Iron Alloys from Diffusion Growth Theory, *ISIJ International*, Vol.32, No.3 (1992), pp.297-305.
 - (12) Krielaart, G. P. et al., Ferrite Formation in Fe-C Alloys during Austenite Decomposition under Non-equilibrium Interface Conditions, *Material Science and Engineering A*, Vol.237, No.2 (1997), pp.216-223.
 - (13) Caginalp, G., An Analysis of a Phase Field Model of a Free Boundary, *Archive for Rational Mechanics and Analysis*, Vol.92, No.3 (1986), pp.205-245.
 - (14) Kobayashi, R., Modeling and Numerical Simulations of Dendritic Crystal Growth, *Physica D*, Vol.63, No.4 (1993), pp.410-423.
 - (15) Takaki, T. et al., Phase-Field Simulations of Anisotropic Morphologies during Directional Solidification of a Binary Alloy, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A*, Vol.70, No.691 (2004), pp.128-135. (in Japanese)
 - (16) Yamamoto, Y. et al. Phase Field Simulation of Grain Growth of Polycrystalline Metals, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A*, Vol.70, No.699 (2004), pp.1551-1558. (in Japanese)
 - (17) Kobayashi, R. et al., A Continuum Model of Grain Boundaries, *Physica D*, Vol.140, No.2 (2000), pp.141-150.
 - (18) Loginova, I. et al., The Phase-field Approach and Solute Drag Modeling of the Transition to Massive $\gamma \rightarrow \alpha$ Transformation in Binary Fe-C Alloys, *Acta Materialia*, Vol. 51, No.5 (2003), pp.1327-1339.
 - (19) Loginova, I. et al., On the Formation of Widmanstätten Ferrite in Binary Fe-C - Phase-field approach, *Acta Materialia*, Vol.52, No.13 (2004), pp.4055-4067.
 - (20) Enomoto, M., *Phase Transformation of Metals*, (2000), p.30, Uchida Rokakuho Publishing Co., Ltd. (in Japanese)
 - (21) Gustafson, P., A Thermodynamic Evaluation of the Fe-C System., *Scandinavian Journal of Metallurgy*, Vol.14, (1985), pp.259-267.
 - (22) Takaki, T. et al., Phase-field Simulation During Directional Solidification of a Binary Alloy Using Adaptive Finite Element Method, *Journal of Crystal Growth*, Vol. 283, No.2 (2005), pp.263-271.
 - (23) Warren, J.A. and Boettinger, W.J., Prediction of Dendritic Growth and Microsegregation Patterns in a Binary Alloy Using the Phase-Field Method, *Acta Metallurgica et Materialia*, Vol. 43, No.2 (1995), pp.689-703.
 - (24) Hillert, M., Diffusion and Interface Control of Reactions in Alloys, *Metallurgical Transactions A*, Vol.6A, (1975), pp.5-19.
 - (25) Andersson, J.-O. and Ågren, J., Models for Numerical Treatment of Multicomponent diffusion in Simple Phases, *Journal of Applied Physics*, Vol.72, No.4 (1992), pp.1350-1355.
 - (26) Ågren, J., A Revised Expression for the Diffusivity of Carbon in Binary Fe-C Austenite, *Scripta Metallurgica*, Vol. 20, No.11 (1986), pp.1507-1510.
 - (27) Ågren, J., Computer Simulations of the Austenite/Ferrite Diffusional Transformations in Low Alloyed Steels, *Acta Metallurgica*, Vol.30, No.4 (1982), pp.841-851.
 - (28) Gotou, Y., *Crystal Growth*, (2003), p.55, Uchida Rokakuho Publishing Co., Ltd. (in Japanese)
 - (29) Eggleston, J.J. et al., A Phase-field Model for Highly Anisotropic Interfacial Energy, *Physica D*, Vol.150, No.2 (2001), pp.91-103.
 - (30) Takaki, T. et al., Two-dimensional Phase-field Simulation of Self-assembled Quantum Dot Formation, *Journal of Crystal Growth*, Vol.287, No.2 (2006), pp.495-499.
 - (31) Furuhashi, T., Structure and Energy of Interphase Boundaries in Steel, *Tetsu-to-Hagane*, Vol.89, No.5 (2003), pp.497-509. (in Japanese)
 - (32) Phelan, D. et al., In Situ Observations of Widmanstätten Ferrite Formation in a Low-carbon Steel., *Materials Science and Engineering A*, Vol.407, No.1-2 (2005), pp.127-134.
 - (33) Spanos, G., Masumura, R. A., Vandermeer, R. A. and Enomoto, M., The evolution and Growth Kinetics of Precipitate Plates Growing by the Ledge Mechanism, *Acta Metallurgica et Materialia*, Vol.42, No.12 (1994), pp.4165-4176.