レベル集合法に基づいた固体材料中の拡散駆動界面運動の 有限要素シミュレーション*

岩 本 剛^{*1}, Mohammed CHERKAOU^{*2}, Esteban P. BUSO^{*3}
澤 俊 行^{*4}, 村 上 英 治^{*5}

A Finite Element Simulation of Interface Motion Driven by Diffusion Field in Solid Materials Based on the Level-set Method

Takeshi IWAMOTO^{*6}, Mohammed CHERKAOU^{*2}, Esteban P. BUSO,
Toshiyuki SAWA and Eiji MURAKAMI

^{*6} Graduate School of Engineering, Hiroshima University,
1-4-1 Kagamiyama, Higashi-Hiroshima-shi, Hiroshima, 739-8527 Japan

The level-set method is becoming one of the most effective tools for predicting the shape and position of moving interfaces. However, this method has not yet been fully developed in the area of mechanics of materials, where interfaces, are generally treated as discrete entities. In this work, numerical simulations of an interface motion associated with a diffusion-driven phase transformation are performed using the level-set method. The constitutive relation of the mobile interface, linking its thermodynamical driving force with its velocity, is derived from the dissipation function. The governing partial differential equation for the coupled diffusion field-level-set function was motivated by the original work of Adalsteinsson and Sethian (2003), and is here developed further to enforce the requirement that Fick's second law be satisfied locally in a direction normal to the interface. The coupled diffusion-level-set model is implemented into the finite element method and is then used to solve a phase transformation problem in a Ni-base superalloy.

Key Words: Phase Transformation, Computational Mechanics, Finite Element Method, Coupling Problem, Interface, Level-set Method

1. は じ め に

レベル集合法は、移動する界面の形状と位置を、精度良く予測する最も効果的方法の 1 つになりつつある^{(1),(2)}。この方法では、連続なレベル集合関数を場の未知変数とし、その初期値問題を解くことによって移動する界面を追跡する。レベル集合関数が界面からの最小距離を示す符号付距離関数の性質を持つことから、移動界面の位置は、レベル集合関数の値が 0 と

なる位置によって陰的に決定され、その時間発展を定める偏微分方程式は、単純な Hamilton-Jacobi 型の方程式となる。レベル集合法の利点は、支配方程式が簡単、方程式から界面移動の描像の容易さ、複雑な界面運動に伴うトポロジーの変化にも対応可能等が挙げられる^{(1),(2)}。

近年、Si の熱酸化⁽³⁾および植物等の生体系の冷凍⁽⁴⁾等の界面移動を伴うような問題に対して、レベル集合法が用いられ、その求解に有限要素法が適用されて始めている。同時に、Hamilton-Jacobi 型の微分方程式の求解時に発生する数値不安定性を安定化させるため、GLS や SUPG 法⁽⁵⁾が積極的に有限要素法に取り入れている。

しかしながら、レベル集合法を用いた多くの連成問題解析では、連成する場の支配方程式だけでなく、用

* 原稿受付 2008 年 4 月 14 日。

^{*1} 正員、広島大学大学院工学研究科機械システム工学専攻 (〒739-8527 広島市鏡山 1-4-1)。

^{*2} The George W. Woodruff School of Mechanical Engineering, Georgia Institute of Technology (801 Ferst Dr., N. W. Atlanta, GA, 30332-0405 USA)。

^{*3} Centre des Materiaux, Mines Paris-Paris Tech (B. P. 87-91003 Evry, France)。

^{*4} 正員、フェロー、広島大学大学院工学研究科機械システム工学専攻。

^{*5} 正員、パブコック日立(株)呉研究所 (〒737-8508 呉市宝町 3-36)。

E-mail: iwamoto@mec.hiroshima-u.ac.jp

いた界面速度の両者ともにレベル集合関数が陽に含まれておらず、界面速度に関しても従来の鋭界面の理論⁽⁶⁾を基礎とした式をそのまま用いている。したがって、上記アプローチではレベル集合関数は界面位置を決定するためだけに用いられ、得られた界面位置のみを入力情報として、場の方程式を解き、得られた場の解のみから界面速度が計算されることになる。レベル集合法の枠組みにおいて、この種の連成問題を取り扱う強力で有用な定式化を目指すためには、界面速度と連成する場の支配方程式の定式化にはレベル集合関数が陽的に含まれることが望ましい。Adalsteinsson と Sethian⁽⁷⁾は連成場として濃度場を取り扱うことによって同様な問題を検討した。しかしながら、界面に平行な方向に沿ってのみ原子の移動を許容した特別な場合のみをモデル化している。より一般的な輸送問題を解くためにはこの枠組みでの更なる精密化が必要である。さらに、熱力学の諸法則を基礎として、レベル集合法の枠組みで界面速度再定式化する必要があるものと考えられる。

そこで、本研究では、拡散によって駆動される相変態に移動界面の数値シミュレーションをレベル集合法によって行う。熱力学的駆動力と界面移動速度を結びつける移動界面の構成関係式を、レベル集合法の枠組みで熱力学の諸法則⁽⁸⁾を用いて導出する。さらに、レベル集合関数との連成を目的に、拡散場問題の支配方程式を、Adalsteinsson と Sethian⁽⁷⁾のモデルを基礎として、界面の法線方向に対して Fick の第 2 法則が局所的に満足することを考慮して更なる一般化を計る。このモデルを有限要素法に実装し、Ni 基超合金の相変態問題⁽⁹⁾をシミュレートする。

2. レベル集合法

図 1 に、界面 Γ によって分割された 2 つの領域 Ω^+ , Ω^- を模式的に表す。今、 Γ が Ω^+ から Ω^- へ移動する場合を考え、 $\mathbf{n}$ は Γ 上に立てた法線ベクトルとする。本手法の場の変数であるレベル集合関数 ϕ は、界面からの符号付距離関数として定義され、その数学的な表現は以下で与えられる^{(1),(2)}。

$$\phi(x_i, t) = \pm \min |x_i(t) - x_{\Gamma_i}(t)| \quad (1)$$

ここで、 x_{Γ_i} は移動界面 Γ 上の位置ベクトル、 $|a_i|$ はベクトル a_i の大きさを表す。なお、本研究では界面の外側で ϕ が負、内側で ϕ が正をとるものとする。上記の定義に従うと、 Γ は $\phi = 0$ のときの表面によって記述される。 ϕ の発展方程式とその初期値はレベル集合関数が定数の集合であることを利用すると、以下

Fig. 1 Definition of the domain Ω and the interface Γ

のように表すことができる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi}{\partial t} + v_i^{ad} \frac{\partial \phi}{\partial x_i} - V \left| \frac{\partial \phi}{\partial x_i} \right| &= 0 \\ \phi(x_i, 0) &= \pm \min |x_i - x_{\Gamma_i}| \end{aligned} \quad (2)$$

ここで、 v_i^{ad} は移流速度成分、 V は相変態等によって発生する界面の法線方向への自発的運動成分を表し、散逸関数から導出される界面移動の駆動力 f によって制御される。上式では、変位速度 v_i が以下のように 2 つの成分に分解することができることを利用している。

$$v_i = v_i^{ad} + v_i^{in} = v_i^{ad} + V n_i = v_i^{ad} - v \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \quad (3)$$

ここで、 v_i^{in} は界面の自発的な運動速度成分を表す。これまでのレベル集合法では、 v_i に曲率に依存した成分が独立に含まれている^{(1),(2)}。しかしながら、本来 v_i^{in} にその影響が含まれることから、ここでは省略している。その詳細は、次節において f を導出する際に述べる。

式 (2) を利用して ϕ を求めた直後、符号付距離関数の性質を回復するため、時間ステップ毎に再初期化⁽¹⁰⁾と呼ばれる過程を行う必要がある。また、ある種の再初期化を行うと、界面位置が変化するため、再初期化直後、体積の回復過程を要する。本研究では、再初期化に Sussman ら⁽¹⁰⁾、体積回復過程に Chang ら⁽¹¹⁾が提案した偏微分方程式をそれぞれ用いる。

3. 熱力学による界面速度の導出

3.1 散逸関数の定義 散逸関数を定式化するために、Cherkaoui⁽⁸⁾が提案した枠組みを用いる。散逸の時間発展を表する散逸関数 D は外部から供給される自由エネルギー P_{ext} と Helmholtz 自由エネルギー Ψ の可逆成分等の差によって以下のように表される。

$$D = P_{ext} - (\dot{\Psi} + P^{int} + \dot{T}\Sigma) \geq 0 \quad (4)$$

ここで、 Σ は全エントロピー、 T は絶対温度、 $(\dot{\cdot})$ は $(\cdot)$ の物質微分を表す。図 2 は典型的な拡散場の境界

Fig. 2 Boundary value problem for a typical diffusion problem on a body of volume Ω

値問題を図示したものである。表面 S の一部 S_c から物質流束 $\bar{J}$ が流入している物体 Ω を考える。この場合、 P_{ext} はある化学物質の表面 S_c からの流れによって発達する仕事率であり、次式のように表すことができる。

$$P_{ext} = \int_{\Omega} \rho b \mu d\Omega - \int_{S_c} \mu j_i n_i^S dS \quad (5)$$

ここで、 n_i^S は S に立てた外向き法線ベクトル、 ρ は密度、 μ は単位体積あたりの化学ポテンシャル、 b は対応する化学物質の湧き出しを表し、材料内部で発生する化学反応や分解に関係している。さらに、 P^{int} は界面エネルギーに関連した仕事率を表し、以下のよう

$$P^{int} = \int_{\Gamma} \sigma \kappa v_{\Gamma} d\Gamma \quad (6)$$

ここで σ は単位表面積当たりの界面エネルギー、 v_{Γ} は式 (3) から導出される界面の法線速度を表す。また、 κ は界面の平均曲率であり、以下の式で書き表すことができる。

$$\kappa = \frac{\partial n_i}{\partial x_i} = \nabla \cdot \left(-\frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \right) \quad (7)$$

3.2 単相材の Helmholtz 自由エネルギー 今、単相材を考え、ある相の全 Helmholtz 自由エネルギーの時間発展 $\dot{\Psi}$ は全比自由エネルギー ψ を用いて以下のように表すことができる。

$$\dot{\Psi} = \frac{D}{Dt} \int_{\Omega} \rho \psi d\Omega \quad (8)$$

熱力学の第 1、および第 2 法則の局所形から、 ψ の時間発展は次式のように求められる。

$$\dot{\psi} = \frac{1}{\rho} \left(\mu \dot{C} + \mu C v_{k,k} - \mu_{,i} j_i - \frac{[q_i - \mu j_i] T_{,i}}{T} \right) - \dot{T} s - \delta \quad (9)$$

ここで、 δ は比散逸速度、 q_i は熱流束ベクトル、 $(\cdot)_{,i}$ は x_i に関する $(\cdot)$ の偏微分を表す。一方、 $\psi = \psi(T, C)$ より、 $\dot{\psi}$ を以下のように表すことができる。

$$\dot{\psi} = \frac{\partial \psi}{\partial C} \dot{C} + \frac{\partial \psi}{\partial T} \dot{T} \quad (10)$$

式 (9) と (10) において、 $\dot{C}$ および $\dot{T}$ の係数を比較し、残りの項は 0 となることから、 μ および比エントロピー s に関して以下の関係式を得る。

$$\mu = \rho \frac{\partial \psi}{\partial C}, \quad s = -\frac{\partial \psi}{\partial T} \quad (11)$$

以上の結果を踏まえると、 ψ は次式のように化学および熱的成分の 2 つに分解可能であると仮定する。

$$\psi = \psi^c + \psi^h = \frac{1}{2\rho} \mu C - \frac{1}{2} T s \quad (12)$$

以上は単相材についての比 Helmholtz 自由エネルギーの定式化であることから、多相材において、 k 番目の相の自由エネルギーは同様に以下のように書ける。

$$\psi^{(k)} = \frac{1}{2\rho^{(k)}} \mu^{(k)} C^{(k)} - \frac{1}{2} T^{(k)} s^{(k)} \quad (13)$$

3.3 レベル集合関数に依存した Helmholtz 自由エネルギーの定義 次に、以下では 2 相材を対象とし、化学反応や相変態が発生すると k が 0 から 1 に変化する場合を考える。Hou ら⁽¹²⁾に従って、レベル集合関数 ϕ を含んだ系全体の比 Helmholtz の自由

エネルギーは 2 重井戸ポテンシャルの形式で以下のように表すことができる。

$$\psi = \psi(C, T, h) = \psi^0(C, T) + h \Delta \psi(C, T) \quad (14)$$

$$\Delta \psi(C, T) = \psi^1(C, T) - \psi^0(C, T)$$

ここで、 $h = H(\phi)$ は ϕ に関する Heaviside の階段関数を表す。図 3 (a) は式 (14) で表される自由エネルギーと濃度の関係を模式的に示したものである。相変態が発生すると、図 3 (a) に示すようにエネルギーが破線から実線に瞬時に遷移するため、図 3 (b) に示すように濃度に変数 ΔC が突然発生することになる。

3.4 レベル集合関数に依存した散逸関数の定式化 比 Helmholtz 自由エネルギーの物質時間微分は式 (14) により以下のように表すことができる。

$$\dot{\psi} = \frac{\partial \psi}{\partial C} \dot{C} + \frac{\partial \psi}{\partial T} \dot{T} + \frac{\partial \psi}{\partial h} \delta(\phi) \dot{\phi} \quad (15)$$

ここで $\delta(x)$ は Dirac の δ 関数である。

式 (5)、(6) および (15) を D の定義式 (4) に代入し、幾つかの計算を経て、整理すると以下のような

Fig. 3 Schematic illustration of (a) free energy double wells in terms of concentration and (b) a typical concentration profile showing the sharp drop in concentration between the two phases

より簡単な形式で散逸関数の速度を書き表すことができる。

$$D = \int_{\Omega} \mu_{,i} j_i d\Omega - \int_{\Omega} \rho \Delta \psi \delta(\phi) \dot{\phi} d\Omega - \int_{\Gamma} \sigma \kappa v_{\Gamma} d\Gamma \geq 0 \quad (16)$$

上式右辺第2項目の積分は ϕ に、第3項目の積分は σ および v_{Γ} に依存していることから、これらが界面の移動に伴う散逸を表すこととなる。

3.5 レベル集合関数に依存する移動界面速度の構成式の定式化 式(16)の右辺第2積分項に式(2)を代入して整理し、界面速度 V に関する項を計算すると以下ようになる⁽¹²⁾。

$$\int_{\Omega} \rho \Delta \psi V \left| \frac{\partial \phi}{\partial x_i} \right| \delta(\phi) d\Omega = \int_{\Gamma} (\rho \Delta \psi) V d\Gamma \quad (17)$$

界面移動に関する散逸は、エネルギー共役変数である界面駆動力 f と界面速度 V の積で表され、式(16)の第3積分項を含み、さらに $v_{\Gamma} = V$ であることを考慮すると、最終的に界面駆動力が以下のように表される。

$$f = \rho \Delta \psi - \sigma \kappa \quad (18)$$

ここで、式(7)の定義にもあるように、 κ は通常計算される平均曲率とは符号が逆になることを注意を要する。非平衡熱力学の条件下では、界面移動速度は駆動力の複雑な関数となるが、ここでは単純化した以下の式を用いる。

$$V(f, \mathbf{n}) = M(\mathbf{n}) \langle f - f_R \rangle \quad (19)$$

ここで、 M は界面易動度を表し、一般に異方性効果を表現するために法線ベクトル $\mathbf{n}$ の関数となってい

る⁽¹²⁾。また、 f_R は様々な種類の欠陥と移動相境界との相互作用に関連のある閾値、 $\langle \rangle$ は反応の不可逆性を示すMacauleyの括弧を表す。

4. 拡散場における支配方程式の導出

図3(b)に示すように化学反応が発生すると濃度場は界面で不連続量 ΔC を持つ。このため、全濃度はレベル集合関数 ϕ により以下のように定式化することができる。

$$C = C^e + h \Delta C \quad (20)$$

ここで、 C^e は拡散に有効な濃度成分である。AdalsteinssonとSethian⁽⁷⁾によって定式化されたモデルは拡散が界面に平行な方向に発生すると仮定している。しかしながら、基本的に拡散は界面を通して発生することから、Fickの第2法則が界面法線方向に成立するものと仮定し、以下のように定式化する。

$$\dot{C}^e = \frac{\partial}{\partial n} \left\{ D_d(\phi) \frac{\partial}{\partial n} [C^e(n, t)] \right\} \quad (21)$$

ここで、 n は界面法線方向に設定した自然座標、 $D_d(\phi)$ は拡散係数で ϕ のみに依存すると仮定する。

式(20)を式(21)に代入した後、整理し、座標変換を経て、最終的に以下のような偏微分方程式を得る。

$$\begin{aligned} C_{,t} &= \{ \bar{D}_{ij} C_{,i} - (v_j^{ad} + V n_j) C \}_{,j} \\ &\quad - D_d(\phi) C_{,i} n_i \kappa + \rho b \\ \rho b &= [L \delta(\phi) (v_i^{ad} n_i + V) - \{ L^2 [D_d(\phi) \delta'(\phi) + D'_d(\phi) \delta(\phi)] + \bar{D}_{ij} \delta(\phi) \phi_{,ij} \}] \Delta C \\ L &= \sqrt{\phi_{,i} \phi_{,i}}, \quad \bar{D}_{ij} = D_d(\phi) n_i n_j \end{aligned} \quad (22)$$

ここで、 $(\cdot)'$ は括弧の中の変数での微分、すなわち、 $\delta'(\phi) = d\{\delta(\phi)\}/d\phi$ を表す。湧き出し項 ρb は、界面移動速度ならびに濃度場の不連続量 ΔC に陽的に依存している。

5. SUPG法に基づく有限要素法定式化

ここでは、上で提案した拡散場-レベル集合関数の枠組みを、SUPG法を用いて有限要素法へ実装する過程について記述する。説明を簡単化するために、ここでは式(2)の左辺第2項は省略する。前述のように、式(2)に示すようなHamilton-Jacobi型の方程式の不安定性はSUPG法により効果的に低減することが可能である。この方法によれば、式(2)の弱形式は重み付残差法に似た形式で以下のように定式化される。

$$\int_{\Omega} \left(\frac{\partial \phi}{\partial t} - V \left| \frac{\partial \phi}{\partial x_i} \right| \right) \left(\delta \phi + \eta v_i \frac{\partial \delta \phi}{\partial x_i} \right) d\Omega = 0 \quad (23)$$

η は安定化パラメータで以下のように表される⁽¹³⁾.

$$\eta = \left[\left(\frac{2}{\Delta t} \right)^2 + \left(\frac{2|v_i|}{h_e} \right)^2 \right]^{-1/2} \quad (24)$$

ここで, h_e は要素長さ, Δt は時間ステップ幅を示す.

本研究ではレベル集合関数, その時間および空間微分は形状関数行列 $\bar{N}$, その空間微分行列 $\bar{B}$, レベル集合関数の節点における値 φ により以下のように離散化することができる.

$$\phi = \bar{N}\varphi, \quad \frac{\partial \phi}{\partial t} = \bar{N} \frac{\partial \varphi}{\partial t}, \quad \nabla \phi = \bar{B}\varphi \quad (25)$$

太字は行列を表す. 上式を式 (23) に代入し, 整理すると以下の関係を得る.

$$\begin{aligned} (\bar{C} + \bar{C}_\eta) \frac{\partial \varphi}{\partial t} + \bar{f} + \bar{f}_\eta &= 0 \\ \bar{C} &= \int_\Omega \bar{N}^T \bar{N} d\Omega, \quad \bar{C}_\eta = \int_\Omega \eta V \bar{B}^T \bar{n} \bar{N} d\Omega, \\ \bar{f} &= - \int_\Omega \bar{N}^T V \sqrt{\varphi \bar{B}^T \bar{B}} \varphi d\Omega, \\ \bar{f}_\eta &= - \int_\Omega \eta V^2 \sqrt{\varphi \bar{B}^T \bar{B}} \varphi \bar{B}^T \bar{n} d\Omega \end{aligned} \quad (26)$$

また, 濃度場についても同様に計算でき, 式 (22) の弱形式を SUPG 法により定式化した後, 有限要素によって離散化を行うと, 以下の有限要素方程式を得る.

$$\begin{aligned} \hat{C} \frac{\partial g}{\partial t} + \hat{K}g &= \hat{f}_s + \hat{f}_g + \hat{f}_c \\ \hat{C} &= \hat{C}_1 + \hat{C}_2, \quad \hat{K} = \hat{K}_{d1} + \hat{K}_{d2} + \hat{K}_{d3} + \hat{K}_{d4}, \\ \hat{C}_1 &= \int_\Omega \hat{N}^T \hat{N} d\Omega, \quad \hat{C}_2 = \int_\Omega \bar{\tau} \hat{B}^T \bar{w}^T \hat{N} d\Omega, \\ \hat{K}_{d1} &= \int_\Omega \hat{B}^T \bar{D}' \hat{B} d\Omega, \quad \hat{K}_{d2} = \int_\Omega \hat{B}^T \bar{w} \hat{N} d\Omega, \\ \hat{K}_{d3} &= \int_\Omega D_d(\phi) \kappa \hat{N}^T \bar{n} \hat{B} d\Omega, \\ \hat{K}_{d4} &= - \int_\Omega \bar{\tau} \hat{B}^T \bar{w}^T \hat{D} \hat{H} d\Omega, \quad \hat{f}_s = \int_\Omega \hat{N}^T \rho b' d\Omega, \\ \hat{f}_g &= \int_\Omega \bar{\tau} \hat{B}^T \bar{w}^T \rho b' d\Omega, \quad \hat{f}_c = \int_\Omega \hat{N}^T \bar{J} d\Omega, \\ \bar{D}' &= \bar{D} + \bar{\tau} \{ \bar{w}^T \bar{w} - D_d(\phi) \bar{w}^T \bar{c} + L D'_d(\phi) \bar{w}^T \bar{n} \} \end{aligned} \quad (27)$$

ここで, g は濃度の節点値, $\hat{N}$ は濃度場を離散化する形状関数行列, $\hat{B}$ は $\hat{N}$ の空間微分行列を表す. また, 2次元問題の場合, $\hat{D}$, $\hat{H}$, $\bar{D}$, $\bar{c}$ の行列はそれぞれ次の通りである.

$$\begin{aligned} \hat{D} &= D_d(\phi) \begin{Bmatrix} n_x^2 & n_y^2 & 2n_x n_y \end{Bmatrix}, \\ \hat{H} &= \begin{bmatrix} \frac{\partial^2 \hat{N}}{\partial x^2} & \frac{\partial^2 \hat{N}}{\partial y^2} & \frac{\partial^2 \hat{N}}{\partial x \partial y} \end{bmatrix}^T, \\ \bar{D} &= D_d(\phi) \begin{bmatrix} n_x^2 & n_x n_y \\ n_x n_y & n_y^2 \end{bmatrix}, \quad \bar{c} = \begin{Bmatrix} n_x n_{x,x} + n_y n_{x,y} \\ n_x n_{y,x} + n_y n_{y,y} \end{Bmatrix} \end{aligned}$$

$\bar{\tau}$ は式 (24) とは別の安定化パラメータで拡散項を含む場合に拡張された式⁽¹³⁾を使用する. 上式中 h_{ev} および h_{ec} はそれぞれ速度場, 濃度場解析に用いる要素長さである. 式 (26) および (27) は φ , g に対して非線形であるため, ここでは後退オイラー法に基づいた陰的時間積分法と Newton-Raphson 法による繰り返し計算によってそれらを求解する.

6. Ni 基超合金における 1 次元相変態問題への応用

この節では, 提案した拡散 - レベル集合連成問題を 1 次元における Ni 基超合金の相変態問題に適用する. この問題では, 超合金の表面において形成される薄い Al_2O_3 基酸化物層を表現するため, Al の拡散による $\gamma'(Ni_3Al) + \gamma \rightarrow \gamma$ で表される 2 つの相境界の運動を対象とする. 従って, Al の拡散によって 2 種の相領域が単固溶体相 γ へ変態することとなる. 詳細は紙面の都合上割愛し, 文献 (9) に譲る.

拡散誘起相変態問題をモデル化するために, 拡散係数と境界条件の定式化が必要である. まず, 式 (22) に含まれる拡散係数は以下のような式を用いる.

$$D_d(\phi) = D_d^0 + h(D_d^1 - D_d^0) \quad (28)$$

ここで D_d^0 および D_d^1 はそれぞれ相変態が発生する前と後の拡散係数を表す. なお, Dumoulin ら⁽⁹⁾に従って, D_d^1 は無視できるほど小さい値とする. また, Ni 基超合金 CMSX4 の酸化挙動の実験結果より, Al 流束と時間の関係は放物線になることが明らかとなっている. ここでは, 境界条件として文献 (9) において用いられている, Al 流束 - 時間関係を利用する⁽⁹⁾.

本研究では, 移動する酸化物境界の 1 次元問題を考える. 対象領域は長さ 0.1 mm の線分で, 拡散が開始される前を時刻 $t = 0$ とし, 領域端に薄い酸化物層が存在するものと仮定する. その線分領域を 2 次線要素を用いて等分に 60 分割し, 解析を行った. 上述したように, 界面移動度 M は一般に界面の法線ベクトルに依存するが, ここでは一定とし, その値を 2.89×10^{-6} s/kg に設定する. さらに, 界面運動の開始を制御する式 (19) 中の閾値 f_R は 0 と仮定して解析を行う. また, 式中に散在する超関数 $\delta(\phi)$, $H(\phi)$, $\delta'(\phi)$ に対しては近似超関数⁽¹²⁾を用い, 界面の幅 ε は要素長程度に設定した.

図 4 は解析で得られた 1000 °C における (a) レベル集合関数, (b) Al 濃度の分布を 25 hrs 毎に示す. 図 (a) より, $\phi = 0$ の条件を満足するレベル集合関数によって, 界面位置が決定できる. 図 (a) から, 拡散の進行に伴ってレベル集合関数の分布が, 図の左から右へ移動していることがわかる. この結果を図 (b) に

Fig. 4 Comparison of (a) the time evolution of the level set function ϕ and (b) the Al profiles calculated every 25 hrs

対応させると、2つの領域間の濃度不連続量は移動界面の位置から決定できる。また、図(b)に示す予測した成分分布から2つの特徴を見出すことが可能であることがわかる。まず第一は、ある時刻に界面付近の低Al濃度側においてAl濃度-位置曲線に小さい丘のような隆起が変態相で濃度分布に現れ、その後消失し、界面運動中に隆起の出現、消失が繰り返されていることである。これは式(22)中の湧き出し項 ρb が、界面近くで無視できない値となったためであると考えられる。 ρb は $\delta(\phi)$ とその導関数を含んでおり、つまり、 $\phi = 0$ において界面ではそれらの値が非常に大きくなり、変態相における濃度の傾きが増加するものと考えられる。その後、変態相を通じてAlが拡散するためにその傾きは減少し、これら一連の湧き出しと拡散挙動が界面運動中に繰り返される。第二は、図(b)に示すように界面付近の高濃度側においてAl濃度にオーバーシュートが見られることである。これは、相

変態の結果、式(28)で定式化した拡散係数の値に大きく急激な変化があること、すなわち、界面の鋭さに応じてステップ応答のようにオーバーシュートが発生することも考えられる。物理的に予測可能なこの現象に対し、Houら⁽¹²⁾の主張を支持して本研究では、式(28)に対して近似超関数を使用し、問題を基準化しているが、設定した拡散係数の差が両相間で大きいために、本研究のものでは不十分となり、オーバーシュートが発生する主要因となる。一方、要素細分化によって回避可能である数値的なものも混在した状態にあるものとも考えられることから、より滑らかな近似超関数によるオーバーシュートの回避法と、数値的なものとの割合の評価について今後検討が必要である。

界面曲率の影響がない本研究の結果の妥当性を検討するため、Dumoulinら⁽⁹⁾の結果と比較する。図5は1000°Cにおける160および500 hrs後の(a)拡散とともに変化する移動界面の位置、(b)Al濃度の分布を示す。文献(9)の結果は拡散問題を解くために差分法を用いている。図5(a)から提案した連成型レベル集合法およびDumoulinら⁽⁹⁾の結果は両者とも界面位置-時間関係の準放物線形状を予測していることがわかる。両予測結果間の違いは図(b)に示すような式(22)中の湧き出し項の寄与によるものが大部分である。Dumoulinら⁽⁹⁾によって提案されたモデルは鋭界面理論⁽⁶⁾に基づくものであり、境界値問題の積分は差分法によって行われている。界面位置と拡散挙動をレベル集合法によっても他のモデルと同様に予測することが可能である。従って、これらの1次元問題の結果は、拡散-レベル集合関数連成法を用いて予測した界面の挙動は定性的、定量的にDumoulinら⁽⁹⁾の解析結果と対応していると言える。

7. おわりに

本研究では、まず、熱力学的駆動力と界面移動速度を関係付ける移動界面の構成関係式を、散逸関数から導出した。また、連成する拡散場の支配偏微分方程式は、AdalsteinssonとSethian⁽⁷⁾が提案したモデルを基礎とし、Fickの第2法則が界面法線方向に成立することを要請し、一般化した。さらに、提案したモデルを有限要素法に実装し、Ni基超合金における相境界を越えたAlの相互拡散による相変態をシミュレートした。解析結果より、提案した方法が拡散によって駆動される界面の運動を正確に予測可能であること、ならびに提案した拡散-レベル集合連成モデルは、個々の相の挙動に関係し得る一般的な枠組みであることを示した。

Fig. 5 Comparison of (a) the time history of the interface position and (b) the Al concentration profiles of Al concentration obtained after 160 and 500 hrs diffusion at 1000 °C obtained by Dumoulin et al.⁽⁹⁾ using finite differences and by the present model

謝 辞

筆者の一人が、仏国 Laboratoire de Physique et Mécanique des Matériaux, Université de Paul Verlaine - Metz, Georgia 工科大学 Lorraine 校, Centre des Matériaux, Ecole des Mines de Paris, 英国 Imperial College に滞在中に遂行した研究である。研究遂行に際して (財) 天田金属加工機械技術振興財団の奨励研究助成ならび文部科学省からの海外先進教育研究実践支援プログラムによる財政援助を受けた。記して謝意を表す。

文 献

- (1) Osher, S., Fedkiw, R. P., *Level set methods and dynamic implicit surfaces*, (2002), pp.1-46, Springer
- (2) Sethian, J. A., *Level set methods and fast marching methods*, (1999), pp.1-28, Cambridge University Press
- (3) Rao, V. S., Hughes, T. J. R., On modelling thermal oxidation of Silicon I: Theory, *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, Vol. 47, Nos. 1 - 3, (2000), pp.341-358
- (4) Liu, Z., Wan, R., Muldrew, K., Sawchuk, S., Rewcastle, J., A level set variational formulation for coupled phase change /mass transfer problems: application to freezing of biological systems, *Finite Elements in Analysis and Design*, Vol. 40, No.12, (2004), pp.1641-1663
- (5) Brooks, A. N., Hughes, T. J. R., Streamline Upwind / Petrov-Galerkin formulations for convection dominated flows with particular emphasis on the incompressible Navier-Stokes equations, *Computational Methods in Applied Mechanics and Engineering*, Vol. 32, No. 3, (1982), pp.199-259
- (6) Abeyaratne, R., Knowles, J. K., On the driving traction acting on a surface of strain discontinuity in a continuum, *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, Vol. 38, No. 3, (1990), pp.345-360
- (7) Adalsteinsson, D., Sethian, J. A., Transport and diffusion of material quantities on propagating interfaces via level set methods, *Journal of Computational Physics*, Vol. 185, No. 1, (2003), pp.271-288
- (8) Cherkaoui, M., Berveiller, M., Saber, H., Micromechanical modeling of martensitic transformation induced plasticity (TRIP) in austenitic single crystals, *International Journal of Plasticity*, Vol. 14, No. 7, (1998), pp.597-626
- (9) Dumoulin, S., Busso, E. P., O'Dowd, N. P., Allen, D., A multiscale approach for coupled phenomena in fcc materials at high temperatures, *Philosophical Magazine*, Vol. 83, Nos. 31 - 34, (2003), pp.3895-3916
- (10) Sussman, M., Smereka, P., Osher, S., A level set approach for computing solutions to incompressible two-phase flow, *Journal of Computational Physics*, Vol. 114, No. 1, (1994), pp.146-159
- (11) Chang, Y. C., Hou, T. Y., Merriman, B., Osher, S., A level set formulation of Eulerian interface capturing methods for incompressible fluid flows, *Journal of Computational Physics*, Vol. 124, No. 2, (1996), pp.449-464
- (12) Hou, T. Y., Rosakis, P., LeFloch, P., A level-set approach to the computation of twinning and phase-transition dynamics, *Journal of Computational Physics*, 150, No. 2, (1999), pp.302-331
- (13) Tezduyar, T. E., Stabilized finite element formulations for incompressible flow computations, *Advances in Applied Mechanics*, Vol. 28, (1992), pp.1-44