

SUS316Lステンレス鋼の急凝固過程における 非平衡マルチフェーズフィールドシミュレーション

Non-Equilibrium Multi-Phase-Field Simulation of Rapid Solidification Process in SUS316L Steel

瀬川正仁¹⁾, 山中晃徳²⁾

Masahito Segawa and Akinori Yamanaka

1) 東京農工大学大学院工学府 (〒184-8588 東京都小金井市中町2-24-16)

2) 博士 (工学) 東京農工大学大学院工学研究院 教授 (〒184-8588 東京都小金井市中町2-24-16)

Additive manufacturing (AM) has attracted much attention as a new technology for producing lightweight and high-strength materials. However, the extremely rapid solidification process makes it difficult to completely control the microstructure formation in order to tailor the mechanical properties. The numerical simulations have been performed to predict solidification microstructure formation under the rapid solidification condition in SUS316L steel using the multi-phase field (MPF) model: the MPF model with finite interface dissipation. To verify the MPF model that can consider strong out-of-equilibrium solid/liquid interfacial conditions, the interfacial permeability is varied parametrically to investigate the effects of the permeability on the simulated solidification behavior and the solute redistribution. The results show that the interfacial permeability parameter strongly influenced the solidification rate and the distribution of solute concentration in the solid/liquid interface.

Key Words : Multi-Phase-Field Method, Additive Manufacturing, Interfacial Migration, Diffusion

1. 諸言

金属積層造形では従来の製造プロセスではあまり見られなかった急速加熱・急速冷却過程があり, それによって優れた機械的特性を呈するだけでなく, 形成される凝固組織も特徴的であることが知られている[1]. 一方で従来よりも急速な凝固プロセスとなるため, 機械的特性を制御するための凝固組織制御方法は未だ確立されていない. そこで, 数値シミュレーションによる凝固組織形成の高精度予測が可能となれば, 材料開発に必要な時間的, 金銭的コストの削減だけでなく, 実験的な方法では理解することが困難な連続的な組織変化を理解し, 凝固組織制御の指導原理を得ることが可能となると期待される.

マイクロ組織形成過程を解析する数値シミュレーション手法として, マルチフェーズフィールド(Multi-phase-field: MPF)法が注目されている[2,3]. MPF法では, フェーズフィールド変数と呼ばれる相または結晶粒の体積分率を表す秩序変数を定義し, 系の全自由エネルギーが時間とともに減少するという熱力学第二法則に基づいて導出される秩序変数の時間発展方程式を解くことで, 界面の移動や溶質元素の拡散を伴うマイクロ組織形成過程の解析が可能となる. これまでの多くのMPF法による組織予測の研究では, 局所平衡の近似として擬平衡を仮定した計算が広く行われてきたが, 急冷のような強い非平衡状態で進行するマイクロ組織変化を計算することは困難であった. これに対して, Steinbachら[4,5]が擬平衡を仮定せずに溶質元素の拡散を計算することで, 強い非平衡状態で進行する現象にも柔軟に対応可能なMPFモデル(NEMPFモデ

ル)を提案した. 本研究では, 鉄鋼材料の急冷条件における急速凝固シミュレーションに, 熱力学計算を援用したNEMPFモデルを適用する[6]. NEMPFモデル特有の界面パーミアビリティなどのパラメータの影響を検証し, ミクロ組織変化と界面の濃度偏析解析への適用可能性を検討する.

2. NEMPFモデル

MPFモデルでは, ミクロ組織の状態を表現するために場の秩序変数を定義する. 本研究では, 結晶粒数 N , 溶質元素数 $n-1$ の系を考え, 結晶粒 i ($i = 1, 2, \dots, N$)の存在確率を表すフェーズフィールド変数 $\phi_i(\mathbf{x}, t)$ と溶質元素 k の濃度変数 $c^k(\mathbf{x}, t)$ を定義する($k = 1, 2, \dots, n-1$). ここで, \mathbf{x} は座標である. また, 各元素の濃度変数 $c^k(\mathbf{x}, t)$ は, 結晶粒 i の溶質元素 k の局所濃度変数 $c_i^k(\mathbf{x}, t)$ とフェーズフィールド変数の重み付け和と定義する. 以下では, (\mathbf{x}, t) は省略して表記する.

本研究では系の全自由エネルギーとして, 勾配エネルギー密度, ダブルウェルポテンシャル, 化学的自由エネルギー密度を考慮し, これらの和が単調減少するようにマイクロ組織変化が生じると仮定して秩序変数 ϕ_i と c^k の時間発展方程式を導出する. NEMPFモデルでは, 溶質元素の濃度変化については, 界面パーミアビリティ P^k と呼ばれる界面での濃度分配の速さを規定するパラメータを導入した局所濃度変数に関する時間発展方程式を解くこととする. これにより, 擬平衡の仮定を必要とせず強い非平衡状態で進行するマイクロ組織変化を表現可能とする[4].

本研究では、各秩序変数の時間発展方程式を、差分法を用いて数値解析する。固相と液相の化学的自由エネルギーと化学ポテンシャルは、TQ-interfaceを用いて合金熱力学ソフトウェアThermo-Calc[7]から逐次直接取得する。拡散係数については初期温度の拡散係数を参考として使用する。それぞれの値は、鉄系合金向けのデータベースであるTCFE7とMOBFE2を使用し取得する。

3. 急速凝固シミュレーション

(1) シミュレーション条件

SUS316Lステンレス鋼を模擬したFe-0.02C-18Cr-14Ni-2Mo-1Mn [mass %]合金の一方向急速凝固シミュレーションをNEMPFモデルを用いて実施する。解析領域の大きさは $2\mu\text{m} \times 4\mu\text{m}$ とし、境界条件として、x方向は周期境界条件、y方向は零ノイマン条件を仮定する。初期条件として、液相中の解析領域の下端の左端と中央に半径 $0.1\mu\text{m}$ の固相を合計で2つ配置する。初期濃度は全領域で一定の値とした。差分格子間隔は $0.01\mu\text{m}$ 、界面幅は $0.07\mu\text{m}$ とした。冷却速度は $1.0 \times 10^5\text{ K/s}$ 、温度勾配 $1.0 \times 10^6\text{ K/m}$ とし、解析領域底面($y=0$)の初期温度を 1692 K とした。固相は面心立方晶(FCC)とする。また、Thermo-Calcで計算される平衡状態においては冷却開始時の解析領域底面の 1692 K においては液相の平衡相分率は5%程度であり、さらなる冷却によりFCCの固相が安定となり成長する条件となる。また、 1692 K における平衡組成をTable 1に示す。C, Cr, Mo, Mnは、固相中の固溶度が小さく液相側に排出されることが予想される。本稿では、界面パーミアビリティ P^k の影響を調べるために、 $1.0 \times 10^{-5}\text{ m}^3/(\text{Js})$ 、 $1.0 \times 10^{-6}\text{ m}^3/(\text{Js})$ の2種類の値を使用した。各溶質元素の界面パーミアビリティは同等と仮定した。

(2) シミュレーション結果

NEMPFモデルを用いて、急速冷却過程の凝固挙動を検証するとともに、NEMPFモデル特有のパラメータである界面パーミアビリティが凝固挙動に及ぼす影響を確認する。まず、界面パーミアビリティを $1.0 \times 10^{-5}\text{ m}^3/(\text{Js})$ とした場合の粒分布と各濃度分布をFig. 1に示す。冷却開始後 0.16 ms 経過時に、解析領域底面から $2.6\mu\text{m}$ ほど固相が成長した時点の結果である。固相の成長に伴い、特に凝固先端および3重点において各濃度が偏析する結果となった。

Table 1 Equilibrium volume fractions of liquid and solid (FCC) phases and equilibrium solute concentrations in Fe-0.02C-18Cr-14Ni-2Mo-1Mn alloy at 1692 K calculated by Thermo-Calc.

	Liquid	Solid
Volume fraction	0.056	0.944
C [mass %]	0.070	0.017
Cr [mass %]	20.41	17.86
Ni [mass %]	13.54	14.03
Mo [mass %]	2.871	1.951
Mn [mass %]	1.094	0.994

また、侵入型合金元素であるCは液相/固相界面に偏析しやすいが、置換型合金元素である他の元素よりも拡散が速いため、凝固終了後の固相領域でも拡散し、固相粒間における濃度の勾配はほとんど確認できなかった。一方で、固相での拡散が遅く、固相中の固溶度が小さいCr, Mo, Mnについては、固相の結晶粒間に一定量偏析する結果となった。ただし、冷却速度が速く界面移動速度が速いため、溶質元素の分配量は、Table 1に示す平衡状態時の濃度よりも低い結果となった。

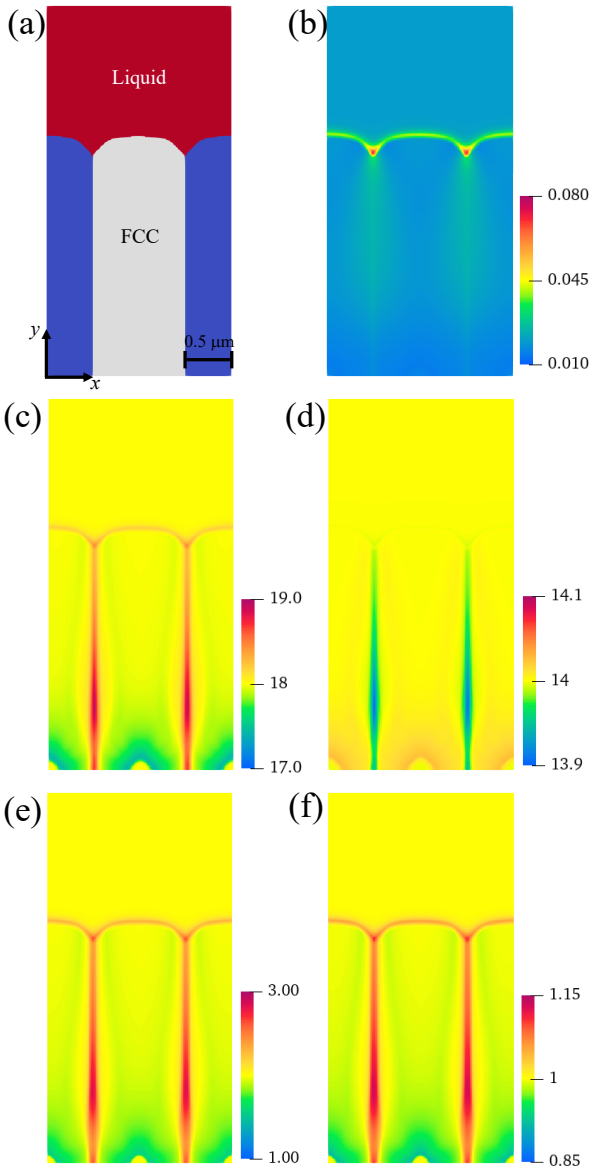


Fig. 1 Distributions of the (a) liquid and solid phases, (b) C, (c) Cr, (d) Ni, (e) Mo, and (f) Mn concentrations at 0.16 ms calculated by the NEMPF model with the interfacial permeability of $1.0 \times 10^{-5}\text{ m}^3/(\text{Js})$ in mass percent.

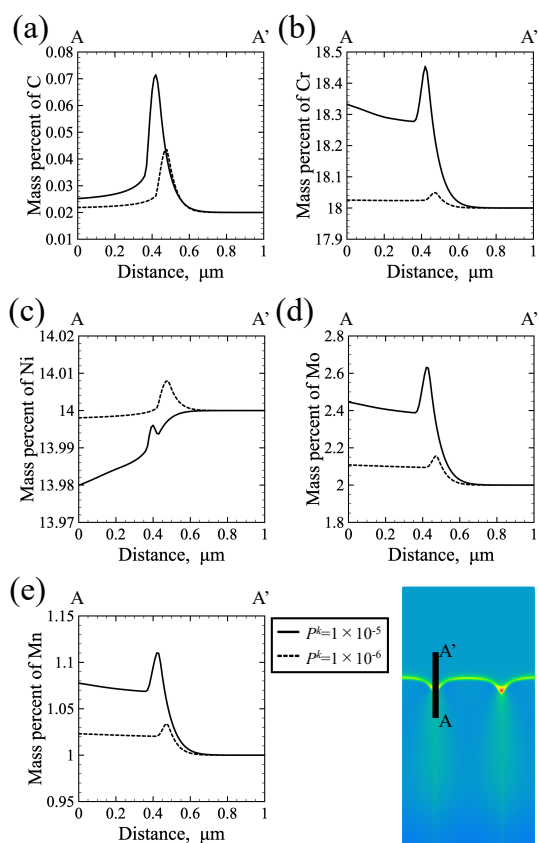


Fig. 2 Profiles of the (a) C, (b) Cr, (c) Ni, (d) Mo, and (e) Mn concentrations along the grain boundary indicated by A-A'.

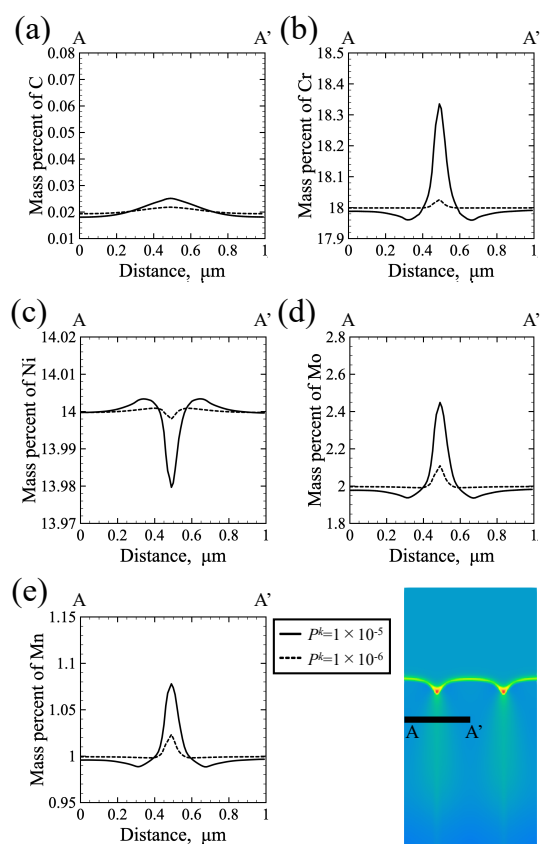


Fig. 3 Profiles of the (a) C, (b) Cr, (c) Ni, (d) Mo, and (e) Mn concentrations across the grain boundary indicated by A-A'.

界面パーミアビリティを $1.0 \times 10^{-5} \text{ m}^3/(\text{Js})$, $1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^3/(\text{Js})$ とした急速凝固シミュレーション結果を示し, 比較する. 冷却開始後に, 2.6 μm ほど固相が成長した時点の液相/固相界面における各元素の濃度プロファイルを図. 2に示す. 凝固先端の液相/固相間の溶質濃度は, 界面パーミアビリティが小さいほど, 分配量は減少する結果となった. また, Niは他の溶質元素と異なり, 固相中の固溶度が大きいので, 下向きのスパイクを形成した. 図. 3に凝固後の固相間における濃度プロファイルを示す. 図. 2の液相/固相間の溶質濃度の分配と同様に, 凝固後の固相間の溶質元素の偏析においても界面パーミアビリティが小さいほど, 分配量は減少する結果となった. なお, 冷却開始後に, 2.6 μm ほど固相が成長するまでの時間は, 界面パーミアビリティが $1.0 \times 10^{-5} \text{ m}^3/(\text{Js})$ の場合は0.16 ms, $1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^3/(\text{Js})$ の場合は0.13 msとなり, 界面パーミアビリティが小さいほど界面速度は速い結果となった. これは, 特に液相/固相界面での濃度勾配が小さく, 平衡に近づくことなく界面での駆動力が大きくなったためと考えられる. 界面モビリティが大きくなるほど分配量が増加し, 平衡に近づくことを確認した.

4. 結言

本研究では, NEMPF モデルを用いた AM プロセスを仮定した急冷条件下における SUS316L の凝固過程の解析により, NEMPF モデルのマイクロ組織変化と界面の濃度偏析解析への適用性を検討した. 2次元シミュレーションを実施し, 凝固の進展とそれに伴う各溶質元素の界面での分配を再現することを確認した. また, 界面パーミアビリティの濃度分配への影響を検証し, 界面パーミアビリティの増加に伴う分配量の上昇を確認した. パラメータのキャリブレーションにより実験を再現するような濃度偏析を多様な条件のもとで解析し評価することが可能であると期待される.

参考文献

- [1] A. Plotkowski, O. Rios, N. Sridharan, Z. Sims, R. T. Ott, R. R. Dehoff and S.S. Babu: *Acta Mater.* **126** (2017) 507-519.
- [2] W. J. Boettinger, J. A. Warren, C. Beckermann and A. Karma: *Annu. Rev. Mater. Res.* **32** (2002) 163-194.
- [3] I. Steinbach and F. Pezzolla: *Phys. D* **134** (1999) 385-393.
- [4] I. Steinbach, L. Zhang and M. Plapp: *Acta Mater.* **60** (2012) 2689-2701.
- [5] L. Zhang and I. Steinbach: *Acta Mater.* **60** (2012) 2702-2710.
- [6] M. Segawa, A. Yamanaka, *Mater. Trans.* (in press).
- [7] <http://www.thermocalc.se> (accessed 4.4.2023).