

非平衡マルチフェーズフィールドモデルを用いたSUS316Lステンレス鋼の急速凝固解析

Simulation of Rapid Solidification in SUS316L Stainless Steel
using Non-Equilibrium Multi-phase-field Model

瀬川正仁^{1,2)}, 仲村章一郎¹⁾, 山中晃徳³⁾

Masahito Segawa, Shoichiro Nakamura 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, E-mail: s237302x@st.go.tuat.ac.jp)

2) 伊藤忠テクノソリューションズ株式会社 (〒105-6950 東京都港区虎ノ門4-1-1神谷町トラストタワー, E-mail: s209582u@st.go.tuat.ac.jp)

3) 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, E-mail: a-yamana@cc.tuat.ac.jp)

Additive manufacturing (AM) is attracting attention as a technology for producing lightweight and high-strength materials. The characteristic of this process is that the solidification process is so rapid that it is difficult to completely control microstructure formation in order to adjust mechanical properties. In order to obtain the process control guidelines, numerical simulations using the multi-phase-field model with finite interfacial dissipation were conducted to predict the solidification structure formation of SUS316L steel under rapid solidification conditions. To validate the multi-phase-field model that can explain strong non-equilibrium solid-liquid interface conditions, a temperature field was set up to reproduce the AM process and parametrically varied the interfacial permeability to investigate the effect of permeability on the simulated solidification behavior and solute redistribution. The results show that the non-equilibrium multi-phase-field model can be computed even for a rapidly cooling solidification process, and that the interfacial permeability parameter affects the solute concentration distribution at the solid-liquid interface.

Key Words : Multi-phase-field Method, Additive Manufacturing, Interfacial Migration, Diffusion

1. はじめに

軽量で高強度な材料を製造する合金製造技術として、金属積層造形(Additive Manufacturing: AM)が注目を集めている。この技術は従来の製造プロセスでは見られなかった急速な加熱・冷却プロセスを伴うため、AMプロセスで形成される微細構造は独特で、優れた機械的特性を実現する[1]。しかしながら、AMプロセスは急激な温度勾配の下での急速な凝固現象を含むため、材料の機械的特性を調整するためにミクロ組織の形成を完全に制御することは困難である。したがって、数値シミュレーション手法を用いたAMプロセスにおけるミクロ組織形成の予測により、プロセス設計指針を得ることが期待される。

マルチフェーズフィールド(Multi-Phase-Field: MPF)法は、ミクロ組織形成過程を2次元および3次元で解析するための強力な数値計算技術として広く用いられている[2,3]。多くの先行研究では、局所平衡の近似として擬平衡条件を仮定したフェーズフィールドモデル[4]が用いられてきたが、擬平衡を仮定した計算は、急速冷却のような強い非平衡界面条件下で進行するAMプロセスのミクロ組織形成を定量的に計算することは困難であった。一方で、Steinbachら[5,6]は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(非平衡MPFモデル)を提

案した。本研究では、CALPHADに基づく熱力学データベースと組み合せた非平衡MPFモデル[7]を用いて、急速冷却の条件下でのSUS316Lステンレス鋼のミクロ組織の凝固過程を解析する。本稿では、レーザー粉末床溶融結合法のAMプロセスを模擬した温度場のもとで解析を実施し、非平衡MPFモデルの重要なパラメータである界面パーミアビリティがミクロ組織の凝固解析に及ぼす影響について検討する。

2. 非平衡MPFモデル

本研究では、Steinbachらによって提案された非平衡MPFモデルを用いる[5,6]。結晶粒を N 個、溶質元素数を n 個とし、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 ϕ_i と溶質元素 j ($j = 1, 2, \dots, n$) の濃度 c_j を秩序変数として定義する。また各元素の濃度 c_j は、結晶粒 i の溶質元素 j の局所濃度をフェーズフィールド変数で重み付けした関数として表現する。

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および溶質元素濃度の保存を考慮することで、系の全自由エネルギー G は式(1)のように表される。

$$G = \int_V \left[\sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N \left(-\frac{a_{ij}^2}{2} \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j \right) + \sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N \left(W_{ij} \phi_i \phi_j \right) \right. \\ \left. + \sum_{i=1}^N (\phi_i f_i) + \sum_{j=1}^{n-1} \lambda \left\{ c^j - \sum_{i=1}^N (\phi_i c_i^j) \right\} \right] dV \quad (1)$$

ここで, a_{ij} は勾配エネルギー係数, W_{ij} はポテンシャルエネルギーのエネルギー障壁の高さ, f_i は結晶粒*i*の化学的自由エネルギー密度, λ はラグランジュの未定定数である. そして, 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 ϕ の時間発展方程式および溶質元素の有限拡散方程式を差分法を用いて数値解析することで, 界面移動や溶質元素の拡散挙動を解析する. なお本研究では, 固相の界面エネルギーについて4回対称の異方性を考慮する.

非平衡MPFモデルでは, 新たに次式の各相の局所濃度の時間発展方程式を解くことで, 界面領域内部の溶質元素の分配量を計算する.

$$\frac{\partial c_i^j}{\partial t} = - \sum_{k=1}^N P_{ik}^j \frac{\delta G}{\delta c_i^j} \quad (2)$$

ここで, 溶質元素の分配量の大きさを規定するパラメータである界面パーミアビリティを定義する[5,6]. 界面での擬平衡を仮定せずに, 式(2)を用いて溶質元素の分配量を算出することで, 強い非平衡状態で進行する相変態挙動やミクロ組織形成が表現可能である.

また, ϕ の時間発展方程式や拡散方程式および局所濃度の時間発展方程式を解く際に, 热力学ソフトウェア Thermo-Calc[8]を用いて化学的自由エネルギーや化学ポテンシャル, 拡散係数を取得した. 本研究では, 化学的自由エネルギーのデータベースとしてTCFE7, 拡散モビリティのデータベースとしてMOBFE2を用いた.

3. 急速凝固解析

(1) 解析条件

SUS316Lの合金を模擬したFe-0.02C-18Cr-14Ni [wt.%] 合金の急速凝固解析を非平衡MPFモデルを用いて実施する. 解析領域は $20 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ の大きさとし, 初期条件として解析領域の下端に幅 $1 \mu\text{m}$, 高さ $0.5 \mu\text{m}$ の固相を20個置き, 残りの上部を液相とする. 固相は平衡計算により安定な相として計算された面心立方晶(FCC)とする. 解析領域の境界条件として零ノイマン条件を採用し, 初期濃度はC, Cr, Niそれぞれについて全領域で一定の値する. 差分格子間隔は $0.05 \mu\text{m}$, 界面幅は $0.35 \mu\text{m}$ とした. 移動熱源の温度場として, Rosenthalの式[9]をもとに温度場を設定する. AMプロセスの温度場を再現するために熱源の出力は25 W, 走査速度 1 m/s , 热伝導率 $27 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$, 热拡散率 $5.2 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, 周囲温度 300 K とした. 热伝導率と热拡散率はSUS316Lの固液共存域である 1700 K における固相と液相の値の平均値[10]を使用した. 温度場は, 热源から $27 \mu\text{m}$

下の位置を $y = 0$ とするFigure 1中の赤い四角の領域とし, 热源が $x = 0$ の位置を $40 \mu\text{s}$ 通過後を計算開始時点とした. これは解析領域下部を固相が安定な 1710 K 以下とするためである. Thermo-Calcで計算される平衡状態時の体積分率が固相と液相とともに50%となる時の平衡組成をTable 1に示す. 1718.2 K において液相の体積分率は0.5であり, その後の冷却により固相が成長する条件となる. C, Crは固相中の固溶度が小さいため, 凝固に伴い液相側に分配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_{ik}^j が凝固解析挙動に及ぼす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つの値を使用した. 各溶質元素の界面パーミアビリティは同じ値と仮定した.

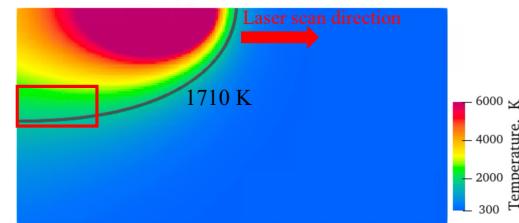


Fig. 1 Distribution of initial temperature. The heat source moves to the right. The red square is the computational domain.

Table 1 Equilibrium volume fractions of liquid and solid (FCC) phases and equilibrium solute concentrations in Fe-0.02C-18Cr-14Ni alloy at 1718.2 K calculated by Thermo-Calc.

	Liquid	Solid (FCC)
Volume fraction	0.50	0.50
C [wt.%]	0.032	0.009
Cr [wt.%]	19.30	16.77
Ni [wt.%]	13.90	14.09

(2) 解析結果

AMプロセスを再現する急速冷却の条件のもと凝固解析を実施し, 非平衡MPFモデルの適用可能性および界面パーミアビリティが凝固解析挙動に及ぼす影響を検証する. Figure 2に計算開始後 $80 \mu\text{s}$ 経過後の解析領域の温度分布を示す. 解析領域全面において固相が安定な温度となり, 解析領域の右上部に向かって温度が上昇するような温度勾配となった. Figure 3に界面パーミアビリティを $1.0 \times 10^{-5} \text{ m}^3/(\text{Js})$ とした場合の計算開始後 $80 \mu\text{s}$ 経過後の粒分布を示す. 計算開始後 $80 \mu\text{s}$ 経過後には $4.15 \mu\text{m}$ 固相が成長した. 界面パーミアビリティを 1.0×10^{-6} と小さくした場合は, より速く凝固が進行し, $4.2 \mu\text{m}$ 固相が成長した. いずれの条件においても, 温度勾配に従い液相/固相界面は右下方向に向かって傾いた形状となった.



Fig. 2 Distribution of Temperature at $80 \mu\text{s}$ in kelvin.

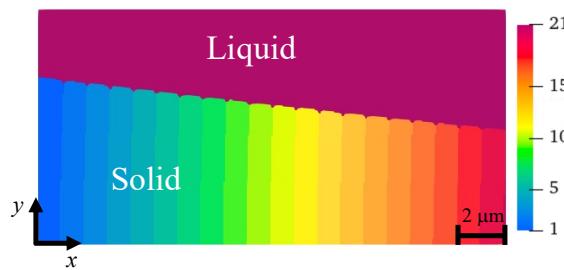


Fig. 3 Distribution of liquid and solid phases at 80 μ s. The upper part is liquid phase, and the lower part is solid phase with 20 grains. Grain numbers 1 through 20 are solid phase and grain number 21 is liquid phase.

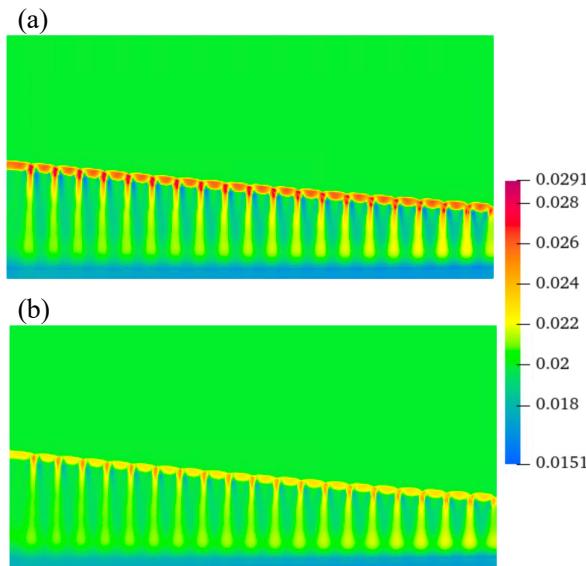


Fig. 4 Distribution of C concentrations at 80 μ s calculated with the interfacial permeability of (a) 1.0×10^{-5} $\text{m}^3/(\text{Js})$ and (b) 1.0×10^{-6} $\text{m}^3/(\text{Js})$ in weight percent.

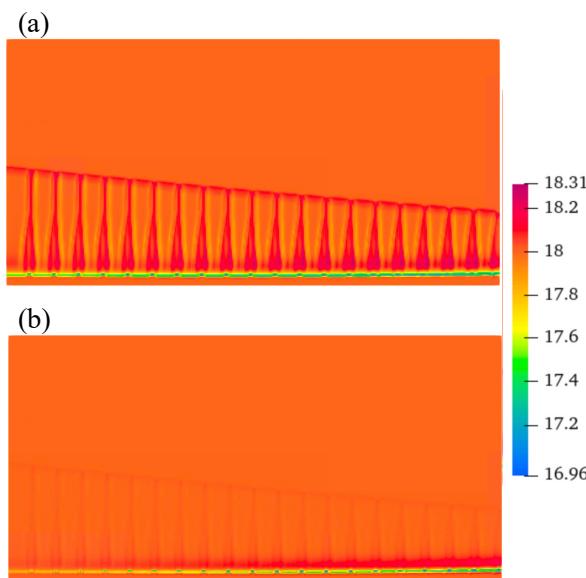


Fig. 5 Distribution of Cr concentrations at 80 μ s calculated with the interfacial permeability of (a) 1.0×10^{-5} $\text{m}^3/(\text{Js})$ and (b) 1.0×10^{-6} $\text{m}^3/(\text{Js})$ in weight percent.

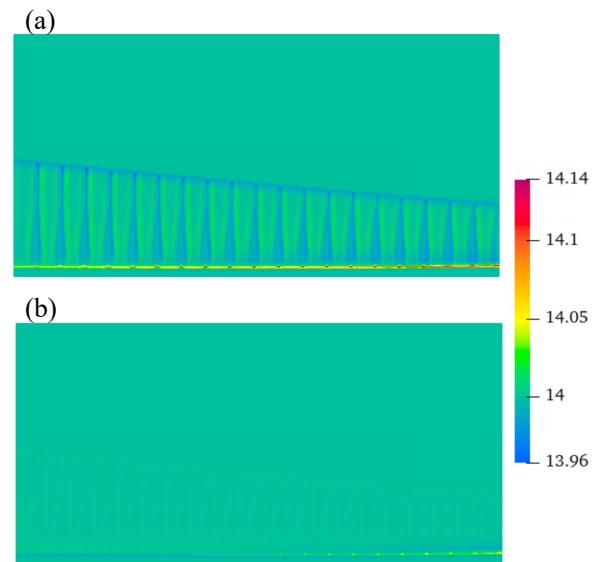


Fig. 6 Distribution of Ni concentrations at 80 μ s calculated with the interfacial permeability of (a) 1.0×10^{-5} $\text{m}^3/(\text{Js})$ and (b) 1.0×10^{-6} $\text{m}^3/(\text{Js})$ in weight percent.

Figure 4に計算開始後80 μ s経過後のC濃度分布を示す。解析領域下部にはC濃度の低い領域が確認できた。これは、計算開始直後は液相/固相界面の温度が1718.2 K付近であり界面移動が生じないことにより、固相から液相へとCが拡散し続け、固相中のC濃度が低下したためである。その後の冷却により、液相側にCを分配しつつ凝固が進行し、液相/固相界面および固相の結晶粒間に濃度が偏析する結果となった。界面パーミアビリティが小さい**Fig. 4(b)**の場合は、**Fig. 4(a)**と比較してC濃度の偏析量は小さくなった。C濃度の最大値は界面パーミアビリティが大きい場合は0.0291 wt.%であり、界面パーミアビリティが小さい場合は0.0261 wt.%であった。**Figure 5**に計算開始後80 μ s経過後のCr濃度分布を示す。侵入型合金元素であるCと比較して、置換型合金元素であるCrは拡散が遅いため、計算初期の固相中への溶質元素の拡散が十分に生じず、凝固開始時の液相/固相界面部分に濃度の偏析が残存する結果となった。その後は、液相側にCrを分配しつつ凝固が進行し、界面に濃度が偏析した。Cと同様に界面パーミアビリティが小さい**Fig. 5(b)**の場合は、**Fig. 5(a)**と比較してCr濃度の偏析量は小さくなった。Cr濃度の最大値は界面パーミアビリティが大きい場合は18.31 wt.%であり、界面パーミアビリティが小さい場合は18.18 wt.%であった。**Figure 6**に計算開始後80 μ s経過後のNi濃度分布を示す。Crと同様に置換型合金元素であるNiは、凝固開始時の液相/固相界面部分に濃度の偏析が残存した。C, Crと異なり、固相側にNiを分配するために、固相の成長に伴う液相/固相界面の濃度は各相内部の濃度よりも低くなった。Ni濃度の最大値は界面パーミアビリティが大きい(a)の場合は14.14 wt.%であり、界面パーミアビリティが小さい(b)の場合は14.07 wt.%であった。各溶質元素の濃度分布より、界面パーミアビリティが大きくなるほど界面での溶質元素の分

配量が増加することを確認した。界面パーミアビリティが小さい場合により速く凝固が進行したのは、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つたためと考えられる。

4. おわりに

本研究では、CALPHADに基づく熱力学データベースと組み合わせた非平衡MPFモデルを用いて、AMプロセスを模擬した急速冷却の条件におけるSUS316Lステンレス鋼のミクロ組織の凝固過程を解析した。合金の組成温度条件に基づいて、凝固に伴うC, Cr, Niの拡散や界面での分配挙動の解析が可能であることを確認した。また、非平衡MPF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解析に及ぼす影響を検証し、界面パーミアビリティの増加に伴い溶質元素の分配量が増加することを確認した。界面パーミアビリティの同定により、AMプロセスで生じる凝固挙動を高精度に再現するシミュレーションが期待される。

謝辞

本研究は、JSPS科学研究費補助金学術変革研究(A) (領域番号: 21A202, 課題番号: 21H05194)の助成のもとで実施した。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- [1] G.B. Bang, W.R. Kim, H.K. Kim, H.K. Park, G.H. Kim, S.K. Hyun, O. Kwon, H.G. Kim: Effect of process parameters for selective laser melting with SUS316L on mechanical and microstructural properties with variation in chemical composition, *Materials & Design*, Vol. 197, 109221, 2021.
- [2] W.J. Boettinger, J.A. Warren, C. Beckermann and A. Karma: Phase-Field Simulation of Solidification, *Annu. Rev. Mater. Res.*, Vol. 32, pp.163–194, 2002.
- [3] I. Steinbach and F. Pezzolla: A generalized field method for multiphase transformations using interface fields, *Phys. D*, Vol. 134, pp. 385–393, 1999.
- [4] S.G. Kim, W.T. Kim and T. Suzuki: Interfacial compositions of solid and liquid in a phase-field model with finite interface thickness for isothermal solidification in binary alloys, *Phys. Rev. E*, Vol. 58, pp. 3316–3323, 1998.
- [5] I. Steinbach, L. Zhang and M. Plapp: Phase-field model with finite interface dissipation, *Acta Mater.*, Vol.60, pp. 2689–2701, 2012.
- [6] L. Zhang and I. Steinbach: Phase-field model with finite interface dissipation: extension to multi-component multiphase alloys, *Acta Mater.*, Vol. 60 pp. 2702–2710, 2012.
- [7] M. Segawa, A. Yamanaka: Multi-Phase-Field Simulation of Non-Equilibrium Solidification in 316L Stainless Steel under Rapid Cooling Condition, *Mater. Trans.*, Vol. 64, No. 6, pp. 1160–1168, 2023.
- [8] <http://www.thermocalc.se> (accessed 4.1.2024).
- [9] D. Rosenthal: The theory of moving sources of heat and its application to metal treatments, *Trans. ASME*, Vol. 68, pp. 849–866, 1946.
- [10] C.S. Kim: Thermophysical properties of stainless steels, Technical report ANL-75-55, Argonne, IL: Argonne National Laboratory; 1975.