

積層造形におけるSUS316Lの急速凝固の フェーズフィールドシミュレーションへのデータ同化適用

Data Assimilation-applied Phase-field Simulation of Rapid Solidification

in SUS316L Stainless Steel during Additive Manufacturing

仲村章一郎¹⁾, 川寄真広²⁾, 瀬川正仁³⁾, 山中晃徳⁴⁾

Shoichiro Nakamura, Masahiro Kawasaki, Masahito Segawa and Akinori Yamanaka

- 1) 東京農工大学大学院 工学府 (〒184-0012 東京都小金井市中町2-24-16, E-mail: s237302x@st.go.tuat.ac.jp)
- 2) 東京農工大学大学院 工学府 (〒184-0012 東京都小金井市中町2-24-16, E-mail: s209582u@st.go.tuat.ac.jp)
- 3) 東京農工大学大学院 工学府 (〒184-0012 東京都小金井市中町2-24-16, E-mail: s229775u@st.go.tuat.ac.jp)
- 4) 博士 (工学) 東京農工大学大学院 工学府 教授 (〒184-0012 東京都小金井市中町2-24-16, E-mail: a-yamana@cc.tuat.ac.jp)

To understand mechanism of unique solidification microstructure formation during additive manufacturing (AM), it is essential to predict the solidification microstructure formation using numerical simulations. Phase field (PF) modeling is a powerful numerical method to simulate the microstructure formation. However, material parameters included in the PF model have to be identified accurately from experimental data. In this study, we develop a new methodology that implements Bayesian data assimilation to the PF simulation of solidification in Fe-C-Cr-Mn-Mo-Ni alloys during AM process. This paper shows the results of numerical experiments where the developed methodology is used to simultaneously estimate solute concentration and material parameters from solidification microstructure morphology.

Key Words : Data assimilation, Multi-phase-field simulation, Additive manufacturing, Solidification

1. 緒言

積層造形は、複雑形状の作成だけでなく、優れた機械的特性を持つ工業部品を製造するための強力な手法である[1]。また、積層造形では従来の製造プロセスではみられない極めて高い冷却速度と温度勾配が生じることから、特異な凝固組織が形成することが知られている[1]。この特異な凝固組織は非常に高速に形成されるため、その詳細を実験的に観察することが困難であり、積層造形における凝固組織形成機構は未解明な点が多い。そのため、数値シミュレーションによって、積層造形における特異な組織形成を高精度に予測することが可能となれば、実験では観察が困難な組織変化を理解し、積層造形の凝固組織制御の指導原理を得ることが期待される。本研究で用いるマルチフェーズフィールド法[2]は、比較的容易に多結晶粒組織形成を予測できる一方、実現に近い結果を得るためにはモデル内のパラメータを適切に設定する必要がある。

実験データをシミュレーションに反映させることで、モデルのパラメータや状態量を統計学的に推定する手法としてデータ同化[3]がある。データ同化は、実験データやシミュレーション結果を確率変数として扱うことで、

不確実性を考慮した状態推定やパラメータ推定が可能である。

本研究では、積層造形で多用されている金属材料であるSUS316Lステンレス鋼のPower bed fusion (PBF) プロセスを想定し、データ同化を適用した合金凝固マルチフェーズフィールドシミュレーションを用いて、PBFにおける凝固組織を高精度に予測することを目的とする。本稿では、本シミュレーション手法が、凝固組織形態から凝固組織内の溶質濃度分布やフェーズフィールドモデル内のパラメータを推定可能であるかを数値実験により検証した結果を示す。

2. 非平衡マルチフェーズフィールドモデル

本研究では、PBFにおける急速凝固のような、強い非平衡状態で進行する現象にも対応可能な非平衡マルチフェーズフィールド (NEMPF) モデル[2]を用いる。NEMPFモデルでは、ミクロ組織の状態を再現するために場の秩序変数を定義する。本研究では液相を含む N 個の結晶粒、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 ϕ_i と溶質元素 k の濃度変数 c^k ($k = 1, 2, \dots, n-1$) を定義する。定義したフェー

ズフィールド変数 ϕ を用いて系の全自由エネルギー汎関数 G を次式で定義する。

$$G = \int_V \{ g_{chem}(\phi, c^k, T) + g_{doub}(\phi) + g_{grad}(\nabla \phi) \} dV \quad (1)$$

ここで、 g_{chem} は化学的自由エネルギー密度、 T は温度である。 g_{doub} はダブルオブスタクルポテンシャル、 g_{grad} は勾配エネルギー密度を表す。式(1)で示した全自由エネルギー汎関数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すると、Allen-Cahn方程式より ϕ の時間発展方程式は次式で表される。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -\frac{2}{N} \sum_{j=1}^N M_{ij}^{\phi} \left(\frac{\delta G}{\delta \phi_i} - \frac{\delta G}{\delta \phi_j} \right) \quad (2)$$

ここで、 M_{ij}^{ϕ} はフェーズフィールドモビリティと呼ばれ、界面の易動度を表す。また、 c^k の時間発展はCahn-Hilliard方程式より次式で表される。

$$\frac{\partial c_i^k}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\sum_{l=1}^N \phi_l \sum_{j=1}^{n-1} D_{ij}^{kl} \nabla c_i^j \right) \quad (3)$$

ここで、 D_{ij}^{kl} は溶質元素 l , j 間の相 i における拡散係数、 c_i^k は結晶粒 i における溶質元素 k の局所濃度変数である。局所濃度変数 c_i^k の時間発展方程式はAllen-Cahn方程式より次式で表される。

$$\frac{\partial c_i^k}{\partial t} = -\sum_{j=1}^{n-1} P_i^{jk} \frac{\delta G}{\delta c_i^j} \quad (4)$$

ここで、 P_i^{jk} はパーミナビリティと呼ばれ、相 i における溶質元素 l , j に関する界面での濃度分配量を規定するパラメータである。NEMPFモデルでは式(4)を解くことで溶質元素の濃度変化を表現するため、従来のマルチフェーズフィールドモデル[4]で用いた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である。

3. 局所アンサンブル変換カルマンフィルタによるデータ同化

本研究で用いる、局所アンサンブル変換カルマンフィルタ (LETKF) [3]は、アンサンブルカルマンフィルタ (EnKF) の実装方法の一つであり、EnKFと比較して、低計算コストで精度よく状態推定とパラメータ推定を行うことが可能である。

(1) 状態空間モデル

状態空間モデルは、時刻 t における合金凝固シミュレーションの計算結果および推定対象のパラメータを格納した拡大状態ベクトル \mathbf{x}_t の時間発展を表すシステムモデルと、実験から得た観測データ \mathbf{y}_t と \mathbf{x}_t を結びつける観測モデルから構成される。非線形のシステムモデルと線形の観測モデルを次式のように定義する。

$$\mathbf{x}_t = f(\mathbf{x}_{t-1}) + \mathbf{v}_t \quad (5)$$

$$\mathbf{y}_t = \mathbf{H}_t \mathbf{x}_t + \mathbf{w}_t \quad (6)$$

ここで、 f は、拡大状態ベクトルの時間発展を表す関数であり、本研究ではNEMPFモデルにあたる。 \mathbf{H}_t は観測演算

子であり、状態ベクトルを観測点へ対応させるほか、物理量を変換する演算子である。システムノイズ \mathbf{v}_t は平均値0、観測誤差共分散行列 \mathbf{Q}_t のガウス分布に従い、観測ノイズ \mathbf{w}_t は、平均値0、観測誤差共分散行列 \mathbf{R}_t のガウス分布に従う。

(2) アンサンブル近似

データ同化では、シミュレーション結果を一意に定めず、シミュレーションに内在する不確かさを考慮するためにシミュレーション結果を確率密度関数 (Probability Density Function : PDF) として扱う。LETKFでは、はじめに、初期条件やパラメータをばらつかせた N 個のシミュレーションを実行し、それぞれの計算結果およびパラメータを格納した拡大状態ベクトル \mathbf{x}_t を N 個用意する。ここで、個々の拡大状態ベクトルをアンサンブルメンバーと呼び、Fig. 1のようにアンサンブルメンバーの疎密で近似的にシミュレーション結果のPDFである $p(\mathbf{x}_t)$ を表現する。この近似をアンサンブル近似と呼ぶ。LETKFでは、ガウス分布に従うPDFを用いる。アンサンブル近似の定義は次式で与えられる。

$$p(\mathbf{x}_t) \cong \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \delta(\mathbf{x}_t - \mathbf{x}_t^{(i)}) \quad (7)$$

ここで、 δ はディラックデルタ関数を表す。 $\mathbf{x}_t^{(i)}$ ($i = 1, 2, \dots, N$)は \mathbf{x}_t のアンサンブルメンバーである。

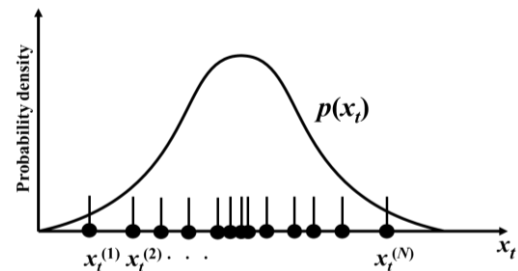


Fig. 1 Schematic diagram of ensemble approximation of a probability density function.

(3) 一期先予測, フィルタリング

Figure 2に、LETKFにおける計算フローを示す。LETKFでは、はじめに合金凝固シミュレーションのPDFを、式(5)を用いて時間発展させる (一期先予測)。次に、一期先予測後のPDFに実験から得た観測データを反映させ、予測値の修正 (フィルタリング) を行う。また、時刻 t までの全ての観測データ $\mathbf{y}_{1:t}$ が反映された、フィルタリング後の合金凝固シミュレーションのPDF $p(\mathbf{x}_t | \mathbf{y}_{1:t})$ は事後分布と呼ばれ、ベイズの定理に基づき、次式で表される。

$$p(\mathbf{x}_t | \mathbf{y}_{1:t}) \propto p(\mathbf{y}_t | \mathbf{x}_t) p(\mathbf{x}_t | \mathbf{y}_{1:t-1}) \quad (8)$$

ここで、 $p(\mathbf{x}_t | \mathbf{y}_{1:t-1})$ は一期先予測後の時刻 t における合金凝固シミュレーションのPDFであり、事前分布と呼ばれる。 $p(\mathbf{y}_t | \mathbf{x}_t)$ は尤度と呼ばれ、観測データが従うPDFである。フィルタリングでは、事後分布 $p(\mathbf{x}_t | \mathbf{y}_{1:t})$ を近似するアンサンブルメンバーを次式で表す。

$$\begin{aligned} \mathbf{X}_{t|t} &= \bar{\mathbf{X}}_{t|t-1} \\ &+ \tilde{\mathbf{X}}_{t|t-1} \left[\mathbf{U} \mathbf{D}^{-1} \mathbf{U}^T \left(\mathbf{H}_t \tilde{\mathbf{X}}_{t|t-1} \right)^T \left(\mathbf{R}_t^{local} \right)^{-1} \right. \\ &\quad \left. \times \left(\mathbf{Y}_t - \mathbf{H}_t \bar{\mathbf{X}}_{t|t-1} \right) + \sqrt{N-1} \mathbf{U} \mathbf{D}^{-1/2} \mathbf{U}^T \right] \end{aligned} \quad (9)$$

ここで、 $\mathbf{X}_{t|t} = [\mathbf{x}_{t|t}^{(1)} \mathbf{x}_{t|t}^{(2)} \mathbf{x}_{t|t}^{(3)} \dots \mathbf{x}_{t|t}^{(N_p)}]$, $\bar{\mathbf{X}}_{t|t-1} = [\bar{\mathbf{x}}_{t|t-1} \bar{\mathbf{x}}_{t|t-1} \bar{\mathbf{x}}_{t|t-1} \dots \bar{\mathbf{x}}_{t|t-1}]$, $\tilde{\mathbf{X}}_{t|t-1} = [\mathbf{x}_{t|t-1}^{(1)} - \bar{\mathbf{x}}_{t|t-1} \mathbf{x}_{t|t-1}^{(2)} - \bar{\mathbf{x}}_{t|t-1} \mathbf{x}_{t|t-1}^{(3)} - \bar{\mathbf{x}}_{t|t-1} \dots \mathbf{x}_{t|t-1}^{(N_p)} - \bar{\mathbf{x}}_{t|t-1}]$, であり、 $\mathbf{Y}_t = [\mathbf{y}_t \mathbf{y}_t \mathbf{y}_t \dots \mathbf{y}_t]$ である。 $\bar{\mathbf{x}}_{t|t-1}$ は、 $p(\mathbf{x}_t | \mathbf{y}_{1:t-1})$ を近似するアンサンブルメンバーの平均値を表す。 \mathbf{R}_t^{local} は、局所化された観測誤差共分散行列であり、次節で解説する。 $\mathbf{U} \mathbf{D}^{-1} \mathbf{U}^T$ は、固有値分解により、以下のように示される。

$$\mathbf{U} \mathbf{D}^{-1} \mathbf{U}^T = \frac{N-1}{\delta} \mathbf{I} + \left(\mathbf{H}_t \tilde{\mathbf{X}}_{t|t-1} \right)^T \left(\mathbf{R}_t^{local} \right)^{-1} \left(\mathbf{H}_t \tilde{\mathbf{X}}_{t|t-1} \right) \quad (10)$$

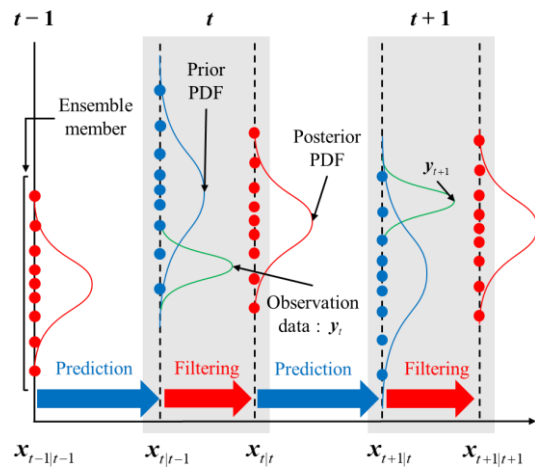


Fig. 2 Computational flow to calculate prior and posterior probability density functions using LETKF.

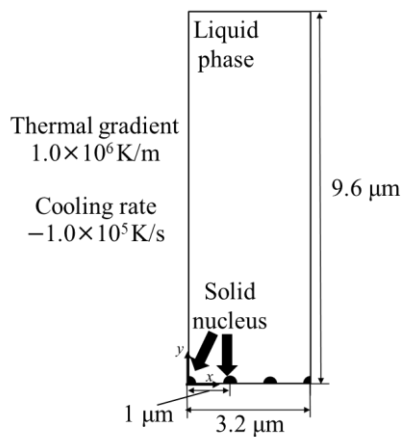


Fig. 3 Computational domain used for the numerical experiment.

(4) 局所化

フィルタリングにより事前分布と尤度から事後分布を計算する際に、観測誤差共分散行列 \mathbf{R}_t を用いる。全ての格子点について共通の \mathbf{R}_t を適用すると、フィルタリングを行う計算格子点と、計算格子点からの距離の遠い観測点の2点間の相関を有意なものと評価するサンプリングエラーを生じる可能性がある。LETKFにおけるフィルタ

リングでは、サンプリングエラーを防ぐため、フィルタリングを行う計算格子点と、計算格子点からの距離の遠い観測点の2点間における状態変数の相関は0であると仮定する局所化を行う。局所化を行う際には、次式に示すように、観測誤差共分散行列 \mathbf{R}_t とガウス関数の逆数の積である、局所化された観測誤差共分散行列 \mathbf{R}_t^{local} を用いてフィルタリングを行う。

$$\mathbf{R}_t^{local} = \mathbf{R}_t \exp \left(-\frac{d^2}{2\sigma^2} \right) \quad (11)$$

ここで、 d は観測点と計算格子点との間の距離であり、 σ は観測データを取り込む基準距離である。

4. 数値実験

本研究で実施する数値実験では、はじめに真値と仮定したパラメータを用いて、積層造形における合金凝固のNEMPFシミュレーションを実施し、得られた結果を疑似的な観測データとする。この疑似観測データをLETKFによって、真値パラメータとは異なる値を用いた本シミュレーション結果に反映させる。データ同化後のシミュレーション結果と疑似観測データの凝固組織、溶質濃度分布、およびモデルパラメータを比較し、その一致度合いを評価する。また、実験からは凝固組織しか観測できないと仮定し、疑似観測データのうち凝固組織形状のみをLETKFによって本シミュレーション結果に反映させる。

(1) 数値実験の条件

状態推定の対象は、溶質元素の濃度分布とする。パラメータ推定の対象は、凝固速度に影響するPFモビリティとし、PFモビリティの真値は、 $1.3 \times 10^{-9} \text{ m}^4/(\text{J}\cdot\text{s})$ と仮定する。初期推定値は $2.6 \times 10^{-9} \text{ m}^4/(\text{J}\cdot\text{s})$ とし、標準偏差、すなわち、アンサンブルメンバーのばらつきは、数値計算が安定に実行可能な範囲で、 $2.6 \times 10^{-10} \text{ m}^4/(\text{J}\cdot\text{s})$ とした。

Figure 3に、本研究で実施する積層造形における合金凝固NEMPFシミュレーションの計算領域を示す。熱源が材料へ照射された際に形成される熔融池での凝固をターゲットとし、計算領域は熔融池下端の一部を切り取るように $3.2 \times 9.6 \mu\text{m}^2$ とする。64 × 192個の規則差分格子点で分割し、境界条件は左右の境界で周期境界条件、上下の境界でゼロノイマン条件とする。初期条件として計算領域下端に半径0.25 μmの固相核を3つ配置する。対象とする合金の平均化学組成は、SUS316Lステンレス鋼を想定しFe-0.02C-18Cr-14Ni-2Mo-1Mn [wt. %]とする。また、積層造形では、温度勾配 $1.0 \times 10^6 \sim 1.0 \times 10^7 \text{ K/m}$ 、冷却速度が $1.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^7 \text{ K/s}$ に及ぶことが知られている[1]。本研究では、計算領域下端($y=0$)の温度を1650 K、上端を1660 Kとし、温度勾配を $1.0 \times 10^6 \text{ K/m}$ 、冷却速度は $-1.0 \times 10^5 \text{ K/s}$ に設定する。濃度分配量を規定するパーミヤビリティは、全溶質元素で同等と仮定し、 $1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^3/(\text{J}\cdot\text{s})$ とした。時間増分は $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{s}$ とし、200 μsまで計算を実施する。実験データは2 μsごとに得られるとし、アンサンブル数は16とする。

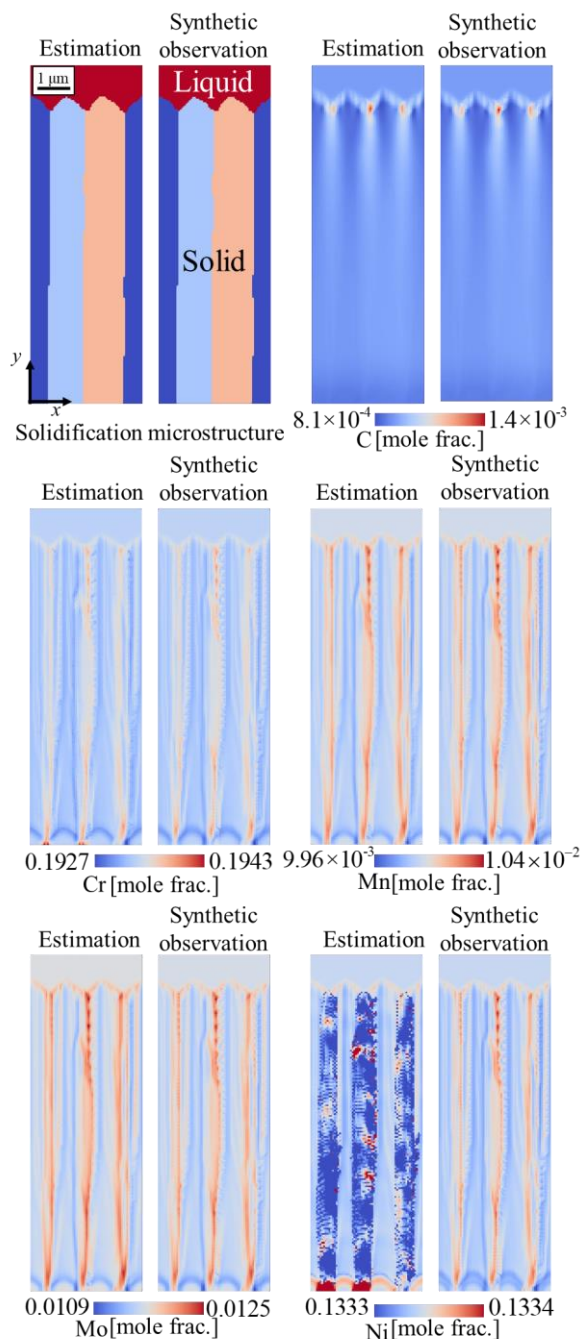


Fig. 4 Comparison between the true and estimated solidification microstructure and solute concentrations in SUS316L stainless steel obtained by the NEMPF simulation coupled with LETKF.

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、合金熱力学ソフトウェアThermo-Calc[5]から取得する。しかしながら、Thermo-CalcのプログラムインターフェースであるTQ-interfaceを用いて、熱力学データを逐次取得する手法では、エネルギー計算のたびにThermo-Calcと通信する必要があり、LETKFと連携した本シミュレーション手法では膨大な計算コストを要する。そのため、本シミュレーションの高速化を目的としてThermo-Calcの熱力学計算をニューラルネットワークで代替する。本研究では、温度 T 、各溶質元素のモル分率 x_i ($i = \text{C, Cr, Mn, Mo, Ni}$) を入力値とし、化学的自由エネルギー g と化学的

自由エネルギーの部分モル量である化学ポテンシャル μ_i ($i = \text{C, Cr, Fe, Mn, Mo, Ni}$) を出力値とする2種類のニューラルネットワークを液相固相それぞれで作成した。訓練データは、Fe-C-Cr-Mn-Mo-Ni 6元系合金のSUS316Lステンレス鋼を対象とし、TQ-interfaceを用いて作成する。Thermo-Calc内のデータベースは、鉄系合金向けのデータベースであるTCFE7を使用する。

(2) 状態推定およびパラメータ推定の結果

Figure 4に、計算最終時刻におけるLETKFによる推定結果と疑似観測データの凝固組織と溶質濃度分布を示す。各結晶粒は、温度勾配に従って、柱状に成長し、二次アームのないデンドライトが生じることがわかる。LETKFによる推定結果は、疑似観測データの凝固組織形状と固液界面の位置と概ね一致することがわかる。また、溶質濃度分布ではC, Cr, Mn, Moは、界面の偏析や、固相内部の濃度分布において推定結果と疑似観測データはよく一致するが、Niは固相内部や界面で誤差が確認できる。これは、Niは濃度の取りうる範囲が狭く、凝固組織形状への影響が他の溶質元素と比較して小さいからであると考えられる。

Figure 5に、LETKFにより推定したPFモビリティの推定結果を示す。計算初期は、真値と推定値は離れているが、フィルタリングを行うたびに、推定値は真値に漸近していくことがわかる。およそ10 μs 以降では網掛けで示した推定値の標準偏差内に真値が含まれているため、本手法でパラメータ推定は可能であるといえる。

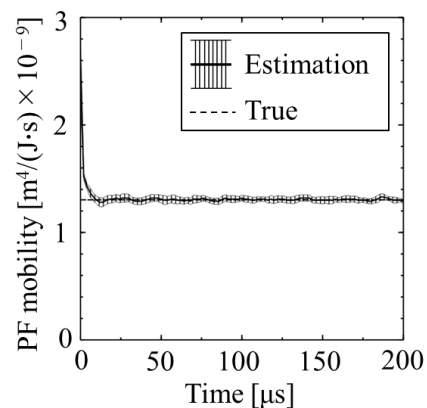


Fig. 5 PF mobility estimated by the data assimilation with LETKF. The solid line and hatched region show the estimation value and standard deviation of the estimated parameters. The horizontal dashed line indicates the true value.

5. 結言

本研究では、積層造形の合金凝固NEMPFシミュレーションへLETKFを適用し、凝固組織形状のみからモデルパラメータを推定可能であることを数値実験により示した。また、Niのような凝固組織形状への影響が小さい元素を除いて、溶質濃度分布も推定可能であることがわかった。今後は、PFモビリティ以外のパラメータを推定可能であるか、数値実験により検証する。

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] 奥川将行, 小泉雄一郎, 柳玉恒: 粉末床溶融結合(PBF)型金属付加製造(AM)のデジタルツイン科学と超温度場材料創成学, ふえらむ, Vol. 27, pp. 11-24, 2022.
- [2] Zhang, L., Steinbach, I.: Phase-field model with finite interface dissipation: Extension to multicomponent multiphase alloy, *Acta Mater.*, Vol. 60, pp. 2702-2710, 2012.
- [3] Hunt, B.R., Kostelich, E.J., and Szunyogh, I.: Efficient data assimilation for spatiotemporal chaos: A local ensemble transform Kalman filter, *Physica D*, Vol. 230, pp. 112-126, 2007.
- [4] Kim, S. G., Kim, W. T., Suzuki, T.: Phase-field model for binary alloys, *Phys. Rev. E*, Vol. 60, pp.7186-7197, 1999.
- [5] Software Development Kits – Thermo-Calc software, <<https://thermocalc.com/products/software-development-kits/#TQ-Interface>>, 2024 年 3 月 20 日アクセス.