計算工学講演会論文集　Vol.30 (2025年6月)　日本計算工学会

大規模固相焼結フェーズフィールドシミュレーションによる緻密化挙動の定量評価

Quantitative Evaluation of Densification Behavior Using Large-Scale Phase-field Simulation of Solid-state Sintering

石井秋光[1)]

Akimitsu Ishii

1) 博(工) 物質・材料研究機構 研究員（〒305-0047 茨城県つくば市千現1-2-1, E-mail: ISHII.Akimitsu@nims.go.jp)

Phase-field (PF) method is a promising approach to predict microstructural evolution and densification during sintering. To experimentally validate the PF model, comparable data to the experiment must be obtained by conducting large-scale simulations and statistically evaluating the results. In this study, we conducted large-scale PF simulations using over hundreds of particles and evaluated some statistics including densification rate, sintered compact density, grain boundary area, and particle radius distribution. The evaluation results provided useful information for understanding sintering behavior.

Key Words : *Phase-field simulation, Sintering, Densification, Large-scale*

1.　緒言

焼結は，粉末状の材料を加圧成型し熱処理することで多結晶材料を作製する技術であり，セラミックスを代表に、様々な材料の作製に用いられている．焼結により，加圧成型体の密度は時間経過とともに上昇することが知られている[1]．この現象は緻密化と呼ばれ，焼結部材の構造やミクロ組織の形成に強く影響する．焼結部材の種々の特性は焼結体密度やミクロ組織に強く依存するため，焼結中の緻密化やミクロ組織形成を予測して制御することが，焼結部材の高特性化を実現するための鍵となる．

フェーズフィールド（PF）法は焼結過程を予測するための有望な手法であり，この20年で多くのPFモデルが開発された[2]．しかしながら，開発されたPFモデル/シミュレーションについての実験に基づいた妥当性検証は，未だ限定的である．PFシミュレーションの実験的な妥当性評価のためには，実験と比較可能なデータを用意する必要がある．焼結の実験で得られるデータは通常，焼結体の緻密化率や密度変化，粒界分布，平均粒径など，統計的なデータである．したがって，PFシミュレーションの結果も統計量で評価することが求められ，そのためには多粒子を含んだ大規模系でのシミュレーションが必須である．

そこで本研究では，様々な種類に分類される焼結プロセスの中でも最も単純な固相焼結に焦点を当て，数百粒子以上を含んだ大規模な固相焼結PFシミュレーションを実施する．そして，そのシミュレーション結果から統計量を系統的に評価する枠組みを開発する．

2.　フェーズフィールドモデル

本研究では，粒子の剛体運動を考慮する固相焼結のPFモデルの中でも最もシンプルなモデル[3]を用いる．秩序変数として，ρとη_iを定義する．ρは焼結粒子の存在確率を表す保存量であり，η_iはそれぞれの粒子を区別する非保存量である．iは粒子番号を表す．有限の幅を持つ界面内で，ρとη_iは0から1に滑らかに変化する．系の全自由エネルギーFは，ρとη_iを用いて次式で表される．

$$F=\int_V \left\{ \begin{aligned} & f_{\mathrm{bulk}}\left(\rho,\eta_i\right) \\ & +\frac{\kappa_\rho^2}{2}\left|\nabla\rho\right|^2+\sum_i\frac{\kappa_\eta^2}{2}\left|\nabla\eta_i\right|^2 \end{aligned} \right\} dV \qquad (1)$$

ここで，f_{bulk}はバルクの化学的自由エネルギー密度である．右辺被積分項の第2, 3項は，それぞれρとη_iについての勾配エネルギー密度であり，κ_ρとκ_ηは勾配エネルギー係数である．ρの時間発展方程式は次式で表される．

$$\frac{\partial\rho}{\partial t}=\nabla\cdot\left(M_\rho\nabla\frac{\delta F}{\delta\rho}-\rho\sum_i\boldsymbol{v}_i\right) \qquad (2)$$

ここで，M_ρは焼結体形状の変化の速さを決定するモビリティであり，計算領域内の座標に依存して，バルク・粒子表面・粒界・気相でのそれぞれの原子拡散係数を用いて決定される．$\boldsymbol{v}_i$はi番目の粒子に働く剛体運動により生じる移流速度である．η_iの時間発展方程式は次式で表される．

$$\frac{\partial\eta_i}{\partial t}=-M_\eta\frac{\delta F}{\delta\eta_i}-\nabla\cdot\left(\eta_i\boldsymbol{v}_i\right) \qquad (3)$$

ここで，M_ηは粒界の易動度を決定するモビリティである．式(2)と(3)は，有限差分法を用いて解く．時間に対しては1階の前進差分，空間に対しては2階の中央差分を用いた．

3.　シミュレーション条件

本研究では，銀粒子の固相焼結を対象にシミュレーションを実施する．**Fig. 1**に，初期状態の粒子分布を示す．粒子は，η_i^2 = 0.5の等値面で示されている．計算領域は，

© 一般社団法人日本計算工学会

一辺の長さが25.6 μmの立方体領域とし，規則差分格子間隔はΔl = 0.2 μmとした．領域内には半径2 μmの球状の粒子を，焼結体の充填率が65 %となるように256個配置した．界面幅は$\delta = 3\Delta l$とした．焼結温度は600°Cとし，60 sの焼結過程を計算した．このとき，計算1ステップあたりの時間増分は$\Delta t = 1 \times 10^{-4}$ sとした．原子拡散係数や界面エネルギーは文献値を参照した．境界条件は，全ての面でゼロノイマン条件とした．

計算には，東京科学大学が運用するスーパーコンピュータTSUBAME4.0[4]を利用した．8個のGPU (NVIDIA H100) を用いた並列計算を行うことで，60 s（6×10^5 計算ステップ）の計算が6.5時間で完了した．

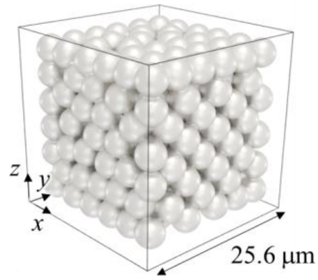

Fig. 1 Initial distribution of 256 silver particles.

4.　シミュレーション結果

Fig. 2に，60 s間の固相焼結シミュレーションで得られた焼結体の形状変化を示す．時間の経過とともに，粒子同士は接合すると同時に，粒子間に存在した空隙が消失した．また，緻密化が起こり焼結体の巨視的な密度が上昇したことにより，焼結体の体積は減少した．ここで**Fig. 3** (a)に，焼結体の密度および体積の変化率を示す．ここで焼結体の密度は，計算領域中心部の15.6 μm^{3}立方体領域内に占める焼結体の割合と定義して算出した．焼結体の体積は，すべての焼結粒子の中心座標を含む凸包の体積であると仮定して算出した．また，体積の変化率は初期状態の体積を基準とした．60 sの固相焼結で，焼結体密度は65 %から93 %まで増加し，体積は19 %減少した．密度および体積の変化率は60 sの時点でまだ収束していないため，シミュレーションを継続することでさらなる緻密化と体積減少が生じると考えられる．

Fig. 3 (b)に粒界面積の変化率を示す．焼結開始直後においては，粒子同士の接触部分（ネック）が成長して粒界を形成するため，粒界面積は急速に増加する．粒界面積は55 sまでは増加傾向を示すが，55 s以降では減少に転じている．これは，粒成長の発生を示唆する結果であり，焼結が初期段階から中期段階に移行した[1]ことを示している．

さらに，**Fig. 4**には60 s後の粒子半径分布を示す．粒子半径は，それぞれの粒子が球状であると仮定して粒子体積から見積もった．初期状態は全ての粒子は半径2 μmであったが，焼結が進行することで，全粒子のうち34 %（88個）の粒子が成長し，残りの粒子の体積は減少した．また，全粒子の平均半径は1.92 μmであった．この結果は，緻密化が進む焼結初期段階では，粒成長は陽には発生しないという既知の知見を支持する結果である．

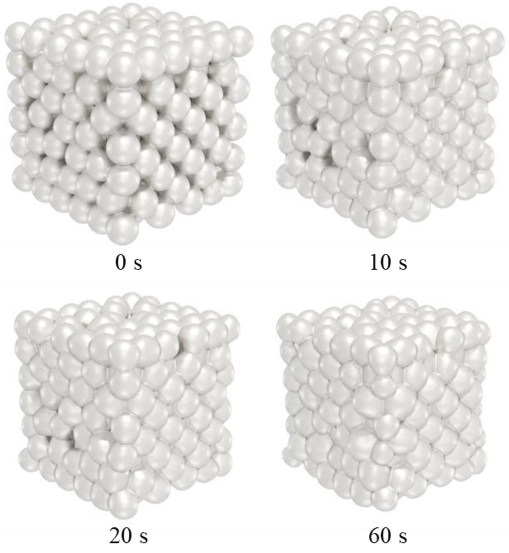

Fig. 2 Morphological change of the sintered silver compact during 60 s. The compact volume decreased due to densification.

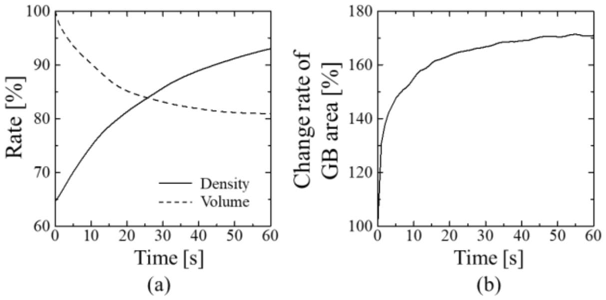

Fig. 3 (a) Variation of density and volume rates and (b) change rate of grain boundary area during the solid-state sintering for 60 s.

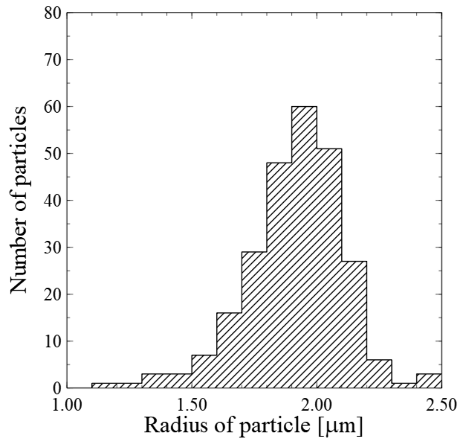

Fig. 4 Histogram of particle radius.

5.　結言

本研究では，銀粒子を対象とした固相焼結シミュレーションを実施し，その結果から焼結体の密度変化率・体積

変化率・粒界面積・粒子半径分布を定量的に評価した．シミュレーション結果から統計量を評価したデータは，PFモデルの実験的な妥当性検証に用いることができるだけでなく，焼結体構造やミクロ組織の最適化や，データ同化[5]を行うための有益なデータとなる．

謝辞

本研究は，JSPS科研費 若手研究24K17179の助成のもと実施した．ここに記して謝意を表する．

参考文献

[1] 吉田英弘: 焼結の基礎–理論的背景から実際まで– II. 焼結緻密化の速度論，まてりあ 第58巻 11号 pp. 677-683, 2019.

[2] Xue, M. and Yi, M.: Phase-field simulation of sintering process: A review, *Comput. Model. Eng. Sci.*, Vol.140, pp.1165-1204, 2024.

[3] Wang, Y.U.: Computer modeling and simulation of solid-state sintering: A phase field approach, *Acta Mater.*, Vol. 54, pp.953-961, 2006.

[4] TSUBAME4.0 (https://www.gsic.titech.ac.jp/tsubame)

[5] Ishii, A. et al.: High-fidelity phase-field simulation of solid-state sintering enabled by Bayesian data assimilation using in situ electron tomography data, *Acta Mater.*, Vol. 278, 120251, 2024.

© 一般社団法人日本計算工学会