

非平衡マルチフェーズフィールドモデルを用いた SUS316Lの積層造形における急冷凝固組織解析

Analysis of Rapid Solidification Microstructure in Additive Manufacturing
of SUS316L using Non-Equilibrium Multi-phase-field Model

瀬川正仁¹⁾, 仲村章一郎²⁾, 山中晃徳³⁾

Masahito Segawa, Shoichiro Nakamura and Akinori Yamanaka

- 1) 博(工) 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: masahito.segawa@ctc-g.co.jp)
- 2) 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)
- 3) 博(工) 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 is attracting attention as a technology for developing materials with superior properties through rapid solidification. This process is characterized by an extremely rapid solidification process, making it difficult to completely control the microstructure formation only by experimentation in order to control mechanical properties. Therefore, obtaining process control guidelines by predicting microstructure formation using numerical simulations is crucial. In this study, numerical simulations using a multi-phase-field (MPF) model with finite interfacial dissipation were performed to evaluate microstructure formation of SUS316L stainless steel under rapid solidification conditions. The MPF simulations were performed using a thermodynamic database and a neural network model. To validate the MPF model, the effect of interfacial permeability on solidification behavior was investigated by parametrically varying the interfacial permeability. The results show that the interfacial permeability has a strong influence on the solute concentration distribution at the solid-liquid interface and changes the solidification rate.

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

1. はじめに

金属積層造形(Additive Manufacturing: AM)は、高強度かつ複雑形状の合金材料を製造可能なプロセスであり、製造時間とコストを削減する手法として注目されている[1]. 急速な加熱・冷却プロセスをとまなう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有している。この特徴を活かし、AMプロセスの造形パラメータを適切に設定し製造することで、高強度かつ高延性な微細構造特性を持つ部品を製造できることが知られている[2]. 一方で、AMプロセス過程では急激な温度勾配の下で急速な凝固現象が生じるため、マイクロ組織の形成を完全に制御することは困難である。そのため、数値シミュレーション手法を用いたAMプロセスにおけるマイ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重要である。特に、AM用の金属材料としても注目されているSUS316Lステンレス鋼においては、炭化物や金属間化合物相の形成が耐食性の低下や脆化を招くことが知られており、プロセスパラメータを最適化することで、マイクロ組織および元素偏析ひいては機械特性や耐食性を制御することが期待される。

マイクロ組織形成過程を2次元および3次元で解析可能な数値計算技術として、マルチフェーズフィールド(Multi-

Phase-Field: MPF)法が広く用いられている[3, 4]. 先行研究において、AMプロセス中のマイクロ組織形成過程の元素濃度を解析する先行研究の多くは、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[5]が用いられてきた。しかしながら、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におけるマイクロ組織形成を定量的に計算することは困難であった。

そこで本研究では、強い非平衡界面条件を考慮するモデルとして非平衡MPFモデル[6, 7]を用いる。非平衡MPFモデルは溶質元素の濃度分配速度を規定するパラメータである界面パーミアビリティを用いることで、擬平衡を仮定せずに柔軟に溶質元素の拡散を計算可能とする[8]. 特に本研究では、CALPHAD(CALculation of PHase Diagram)法に基づく合金熱力学データベースと組み合わせた非平衡MPFモデル[9]を用いて、SUS316Lステンレス鋼の急冷凝固組織を解析する。本稿では、レーザー粉末床溶融結合法のAMプロセスを想定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マイクロ組織の凝固挙動と元素分配挙動に及ぼす影響を検証する。

2. 非平衡MPFモデル

MPFモデルでは、組織の状態を表現するために必要な場の秩序変数を定義する。本研究では、結晶粒数を N 、溶質元素数を $n-1$ とする系を考え、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 ($k = 1, 2, \dots, n-1$)の濃度変数 $c_i^k(\mathbf{x}, t)$ を定義する。ここで、 \mathbf{x}, t は位置と時間を表す。また、各溶質元素の濃度変数 $c^k(\mathbf{x}, t)$ は、フェーズフィールド変数 $\phi_i(\mathbf{x}, t)$ と結晶粒 i の溶質元素 k の局所濃度変数 $c_i^k(\mathbf{x}, t)$ の重み付け和と定義する。以下では、 (\mathbf{x}, t) は省略する。

本研究では、勾配エネルギー密度、ダブルオブスタクルポテンシャル、化学的自由エネルギー密度、溶質元素濃度の保存のそれぞれを考慮する。系の全自由エネルギー G は式(1)のように表される。

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

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障壁高さ、 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。系の全自由エネルギー G が単調減少するようにミクロ凝固組織変化が生じると仮定して秩序変数 ϕ_i と c_i^k の時間発展方程式を導出する。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、界面での溶質元素の濃度分配の速さを規定するパラメータである界面パーミアビリティ P^k を導入した局所濃度変数 c_i^k の時間発展方程式を新たに解く。

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

式(2)を用いて溶質元素の濃度分配を計算することで、擬平衡の仮定を必要とせず強い非平衡状態で進行するミクロ組織変化を表現可能とする[6, 7]。

本研究では、時間発展方程式を、差分法を用いて数値解析する。また時間発展方程式を解く際に、面心立方晶(FCC)の固相と液相それぞれ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[10]より取得する。さらに、計算効率化のために、各熱力学データをNeural Network(NN)モデルによる回帰モデルで代替する。本研究では、温度 T 、各溶質元素の溶質元素濃度から、化学的自由エネルギーと化学ポテンシャルを算出する2種類のNNモデルを用いる。入力層と隠れ層1層および出力層の3層構造とし、隠れ層のノード数は100とする。活性化関数は、PReLUを用いる。訓練データは、Fe-C-Cr-Mn-Mo-Niの6元系合金を対象としたTQ-interface用いた計算により作成する。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。熱力

学データの各値は、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. 急速凝固組織解析

(1) 解析条件

SUS316L ステンレス鋼を模擬したFe-0.02C-18Cr-14Ni-2Mo-1Mn [mass%]合金の急速凝固解析を実施する。解析領域は $2 \mu\text{m} \times 4 \mu\text{m}$ の大きさとし、差分格子間隔は $0.01 \mu\text{m}$ 、界面幅は $0.07 \mu\text{m}$ とする。解析領域の境界条件として、水平方向には周期境界条件、垂直方向にはゼロノイマン境界条件を仮定する。初期条件として、Figure 1に示す半径 $0.1 \mu\text{m}$ の固相を解析領域の左下と中央下にそれぞれ配置し、残りを液相とする。初期濃度はC, Cr, Ni, Mo, Mnそれぞれについて全領域で一定の値する。冷却速度は $1.0 \times 10^6 \text{ K/s}$ 、温度勾配は $1.0 \times 10^7 \text{ K/m}$ とし、解析領域底面の初期温度を 1692 K とする。Thermo-Calcの平衡計算においては、解析領域底面の 1692 K のときの固相の平衡相分率は95%であり、さらなる冷却により固相が安定となり成長する条件となる。

本稿では界面パーミアビリティ P^k が凝固挙動に及ぼす影響を調べるために、侵入型合金元素であるCの界面パーミアビリティ P^C を一定の値として置換型合金元素 X ($X = \text{Cr, Ni, Mo, Mn}$)の界面パーミアビリティ P^X の界面パーミアビリティを変更した条件で計算し、溶質元素偏析量と凝固速度を比較する。界面パーミアビリティの条件をTable 1に示す。界面パーミアビリティ P^X の値は元素によらず同一の値とする。いずれの条件においても、置換型合金元素に比べて侵入型合金元素の方が拡散が容易であることを考慮し、侵入型合金元素の界面パーミアビリティの値が大きくなるように設定する。

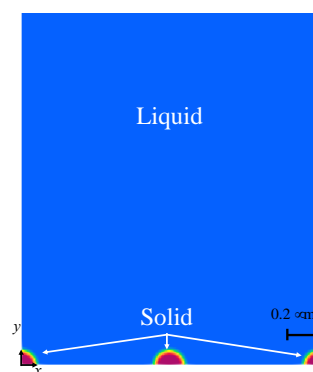


Fig. 1 Distribution of initial microstructure.

Table 1 Interfacial permeability for each condition ($\text{m}^3/(\text{Js})$).

	P^C	P^X ($X = \text{Cr, Ni, Mo, Mn}$)
Case 1	1.0×10^{-5}	1.0×10^{-5}
Case 2	1.0×10^{-5}	1.0×10^{-6}
Case 3	1.0×10^{-5}	1.0×10^{-7}

(2) 解析結果

急冷凝固解析を実施し、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挙動に及ぼす影響を検証する。Figure 2に冷却開始後10 μs 経過時の粒分布を示す。いずれの条件においても冷却により固相が成長し、凝固が進行した。Case 1と置換型合金元素の界面パーミアビリティを小さくしたCase 2およびCase 3を比較すると、Case 2、Case 3と界面パーミアビリティを小さくするほど、より速く固相が成長した。この凝固速度の上昇に伴い、平滑界面による成長に近づいた。Figure 3に冷却開始後10 μs 経過時のC濃度分布を示す。冷却により、界面の液相側に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Cが偏析する結果となった。また、Case 1に比べてCase 2およびCase 3の界面におけるC偏析量は小さくなった。Figure 4に冷却開始後10 μs 経過時のCr濃度分布を示す。Cと同様に液相/固相界面および固相の結晶粒間にCrが偏析した。界面パーミアビリティを小さくしたCase 3になるほどCrの偏析量は小さくなった。

Figure 5に液相/固相界面に沿った溶質元素の濃度分布を示す。Fig. 5(a)に示すように、界面パーミアビリティ P^X が小さくなるほどC濃度のスパイクが低下した。凝固速度が速いために界面で元素が十分に分配されなかったものと考えられる。また、0.1 μm の位置には固相中のC濃度の低下した。これは、計算開始直後は界面移動がしないことにより、液相/固相界面でCが分配し続けたためである。Fig. 5(b)に示すように、Cr濃度についてもCと同様に液相/固相界面に濃度スパイクが形成され、界面パーミアビリティ P^X が小さくなるほどCr濃度のスパイクが低下した。0.1 μm の位置の固相中のCr濃度は、Cに比べてCrの拡散が遅いためにスパイク形状の急峻な勾配が残存した。

凝固速度の減少について検証するために、Thermo-Calcソフトウェアを用いて計算した駆動力をFigure 6に示す。初期濃度の1692 Kにおける固相の駆動力を示しており、C濃度とCr濃度がそれぞれ低下するほど固相の駆動力は増加することが確認できる。界面パーミアビリティを小さくすると、界面の液相側における溶質元素濃度が低下し、固相が安定な平衡条件に近づくことなく駆動力が増加し、凝固速度が増加したと考えられる。

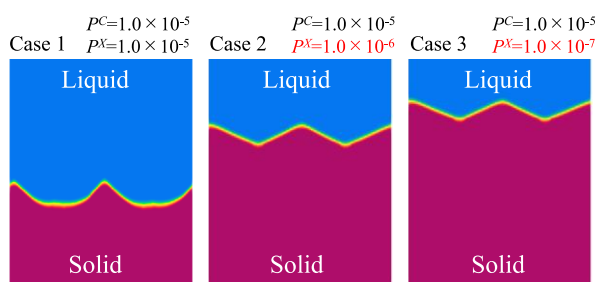


Fig. 2 Distributions of liquid and solid phases calculated with the Interfacial permeability P^X of 10×10^{-5} , 10×10^{-6} and $10 \times 10^{-7} \text{ m}^3/\text{J/s}$.

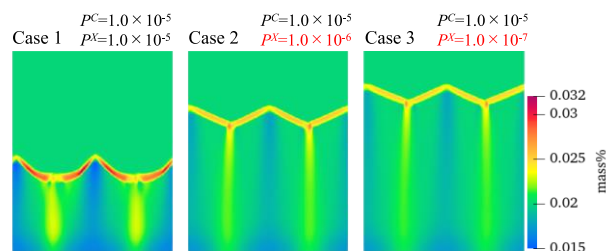


Fig. 3 Distributions of carbon concentrations calculated with the Interfacial permeability P^X of 10×10^{-5} , 10×10^{-6} and $10 \times 10^{-7} \text{ m}^3/\text{J/s}$.

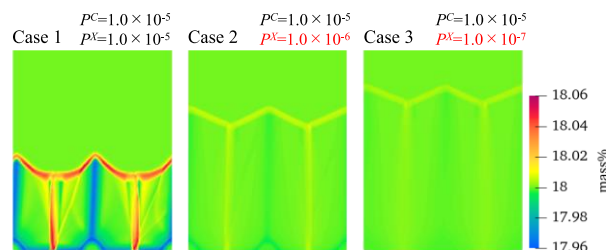


Fig. 4 Distributions of chromium concentrations calculated with the Interfacial permeability P^X of 10×10^{-5} , 10×10^{-6} and $10 \times 10^{-7} \text{ m}^3/\text{J/s}$.

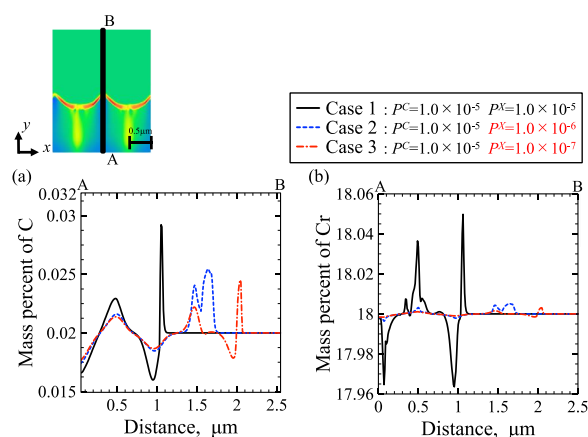


Fig. 5 Profiles of (a) carbon, (b) chromium concentrations along the liquid/solid interface.

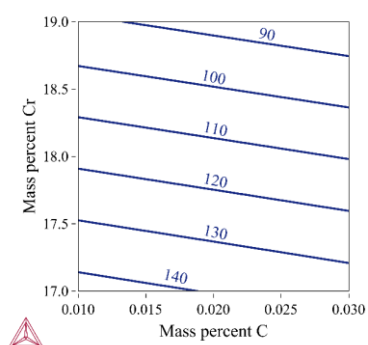


Fig. 6 Contour plot of driving force in J/mol of solid phase in Fe-0.02C-18Cr-14Ni-2Mo-1Mn alloy at 1692K.

4. おわりに

本研究では、熱力学データと連携した非平衡MPFモデルを用いて、AMプロセスを模擬したSUS316Lステンレス鋼の急冷凝固過程を解析し、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マイクロ組織の凝固挙動と元素分配挙動に及ぼす影響を検証した。置換型合金元素の界面パーミアビリティの減少に伴い、溶質元素の分配量が低下し、熱力学データに基づいて駆動力が低下し凝固速度が減少することを確認した。界面パーミアビリティを同定することにより、AMプロセスで生じる凝固挙動を高精度に再現し、元素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。

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] W.E. Frazier: J. Mater. Eng. Perform **23** (2014) 1917–1928.
W. E. Frazier: Metal Additive Manufacturing: A Review, J. Mater. Eng. Perform., Vol. 23, pp.1917–1928, 2014.
- [2] K. Saeidi, X. Gao, Y. Zhong and Z.J. Shen: Hardened austenite steel with columnar sub-grain structure formed by laser melting, Mater. Sci. Eng. A, Vol. 625, pp.221–229, 2015.

- [3] 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.
- [4] I. Steinbach and F. Pezzolla: A generalized field method for multiphase transformations using interface fields, Phys. D, Vol. 134, pp. 385–393, 1999.
- [5] 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.
- [6] I. Steinbach, L. Zhang and M. Plapp: Phase-field model with finite interface dissipation, Acta Mater., Vol.60, pp. 2689–2701, 2012.
- [7] 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.
- [8] M. Segawa and A. Yamanaka, Multi-Phase-Field Simulation of Non-Equilibrium Solidification in 316L Stainless Steel under Rapid Cooling Condition, Mater. Trans., Vol. 64, pp. 1160–1168, 2023.
- [9] M. Segawa, S. Nakamura and A. Yamanaka: Evaluation of solute segregation in SUS316L stainless steel under rapid solidification using a non-equilibrium multiphase field model, Comput. Mater. Sci., Vol. 250, 113697, 2025.
- [10] <http://www.thermocalc.com> (accessed 4.3.2025).