フェーズフィールド法による二元合金の一方向凝固シミュレーション（狭い領域中で成長する結晶の微視構造評価）

Phase-field simulations of a binary alloy during directional solidification (Microstructural development inside a narrow channel)

○ 正　高木　知弘　(神戸大・海事科学)　　正　福岡　俊道　(神戸大・海事科学)
正　冨田　佳宏　(神戸大・工)

Tomohiro TAKAKI, Faculty of Maritime Science, Kobe University, Kobe
Toshimichi FUKUOKA, Faculty of Maritime Science, Kobe University, Kobe
Yoshihiro TOMITA, Graduate School of Science and Technology, Kobe University, Kobe

Key Words : Phase-Field Method, Directional Solidification, Narrow Channel, Microstructure

1　緒言

長繊維を有する金属基複合材料の製造段階のように，狭い領域中で凝固する金属の微視構造は，繊維のような拘束の無いバルク中で凝固するものとは異なることが知られている．このような構造変化を把握しておくことは，材料設計上極めて重要である．本研究では，狭い領域中における二元合金の一方向凝固シミュレーションを行い，領域幅，結晶の優先成長方向，母材と領域壁の濡れ角が，凝固微視構造におよぼす影響を評価する．シミュレーション手法としては，二次元問題としてフェーズフィールド法を採用する．

2　解析方法

フェーズフィールド法を用いた Ni-Cu 合金の一方向凝固シミュレーションを行う．ここでは，濃度変化による対流の影響を考えず，また温度勾配 G を一定と仮定している．文献 [1, 2] で論じられた理論を基礎とすると，二次元問題におけるフェーズフィールド方程式は次のようになる．

フェーズフィールド方程式

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} = M_\phi\left[-\frac{\partial}{\partial x}\left(\varepsilon\frac{\partial\varepsilon}{\partial\theta}\frac{\partial\phi}{\partial y}\right)+\frac{\partial}{\partial y}\left(\varepsilon\frac{\partial\varepsilon}{\partial\theta}\frac{\partial\phi}{\partial x}\right)+\nabla\cdot\left(\varepsilon^2\nabla\phi\right) -\left(1-16a\chi g(\phi)\right)\left\{(1-c)H^A(\phi,T)+cH^B(\phi,T)\right\}\right] \quad (1)$$

拡散方程式

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\nabla\cdot\left\{D_c c(1-c)\frac{v_m}{R}\left[H^A(\phi,T)-H^B(\phi,T)\right]\nabla\phi - D_c\nabla c\right\} \quad (2)$$

ここで，ϕ は 0（液相）と 1（固相）の間で連続的に変化するフェーズフィールドパラメータ，c は濃度，T は温度，t は時間，a はノイズの振幅，χ は [-1,1] の乱数，v_m はモル質量，R は気体定数である．

界面における異方性は，次に示す $\varepsilon(\theta)$ を用いて考慮している．

$$\varepsilon(\theta) = \bar{\varepsilon}\left[1+\gamma\cos\left\{k(\theta-\psi)\right\}\right] \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots (3)$$

ここで，$\bar{\varepsilon}$ は界面エネルギー σ と界面厚さに関係するパラメータ，γ は異方性強度，k は異方性モード，θ は界面法線方向と x 軸との角度，ψ は結晶の優先成長方向と x 軸との角度である．

フェーズフィールド方程式中，$H^A(\phi,T)$ と $H^B(\phi,T)$ は次のような関数である．

$$H^{A,B}(\phi,T) = G^{A,B'}(\phi)+p'(\phi)L^{A,B}\left(\frac{T-T_m^{A,B}}{TT_m^{A,B}}\right) \quad \cdots\cdots (4)$$

ここで $G^A(\phi) = W^A g(\phi)$，$G^B(\phi) = W^B g(\phi)$，$g(\phi) = \phi^2(1-\phi)^2$，$p(\phi) = \phi^3\left(10-15\phi+6\phi^2\right)$ である．T_m^A と T_m^B，L^A と L^B は，純粋な A と B に対する融点と潜熱である．また，A は溶媒，B は溶質を示しており，本研究では A が Ni，B が Cu に対応する．M_ϕ は濃度に依存するとして，$M_\phi = (1-c)M_\phi^A + cM_\phi^B$ とする．また，拡散係数 D_c は ϕ の関数として，$D_c = D_l + p(\phi)(D_s - D_l)$ を用いている．ここで，D_l と D_s は液相と固相における拡散係数である．また，上式中 M_ϕ^A，M_ϕ^B，W^A，W^B，$\bar{\varepsilon}$ は，純粋な A と B 中における一次元平衡状態および定常成長状態を仮定することにより，物性値と界面厚さに関係づけられるパラメータである(1)．

空間の離散化手法として有限要素法, 時間に関してはクランク・ニコルソンの中央差分式を採用する．フェーズフィールド ϕ と濃度 c が変化する領域は，界面付近に限定される．このため，界面近傍の要素のみを解析対象とすることにより，解析を効率的に行う．

図 1 は初期条件と境界条件を示している．その場観察を想定したシミュレーションを行うため，物質は解析領域右端から液相（$\phi_\infty = 0$，$c_\infty = 0.4083$）として入り，左側に速度 V で移動し，左端から固相となって出て行く．初期状態として，界面は液相線温度 1594.5K の位置で平

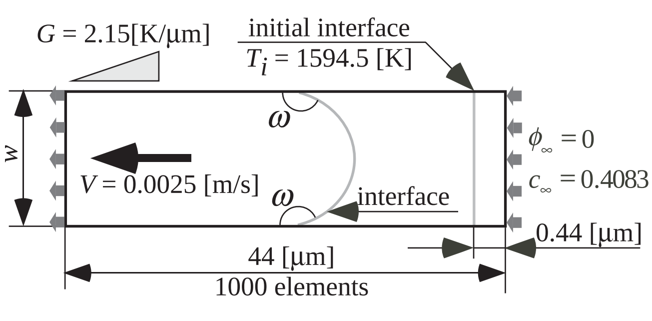
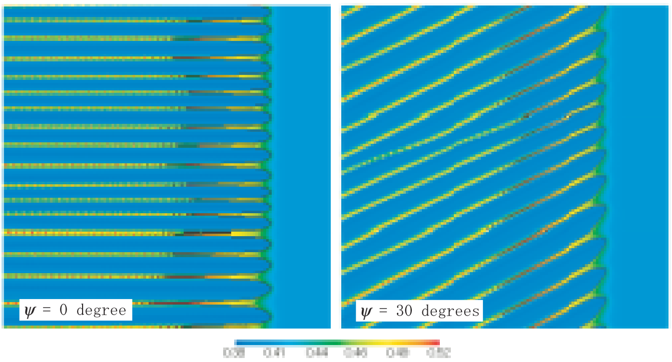


Fig. 1 Initial and boundary conditions.

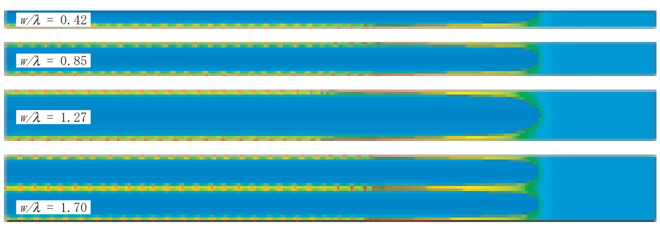


(a) Without misorientation (b) With misorientation

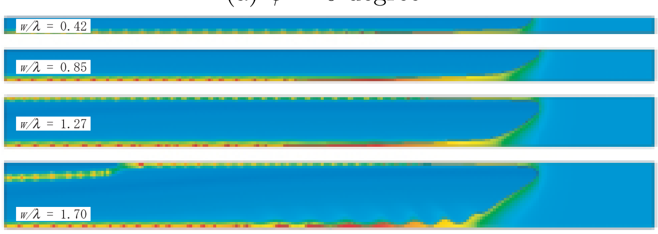
Fig. 2 Steady state cellular structures inside wide region without any constraint due to fibers (t = 26400 μs).

滑とし，フェーズ ϕ と濃度 c はステップ状としている．解析領域の上下境界では濡れ角度 ω を考慮している．温度勾配 G=2.15 K/μm，速度 V=0.0025 m/s としている．

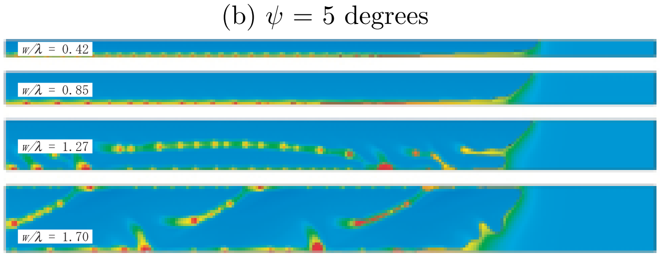
本解析で用いた各変数の値は以下のとおりである．T_m^A=1728 K，T_m^B=1358 K，L^A=2.350×10^{9}J/m^3，L^A=1.728×10^{9}J/m^3，a=0.4，v_m=7.4×10^{-6} m^3/mol，R=8.31451 J/Kmol，γ=0.04，k=4，D_l=1.0×10^{-9}m^2/s，D_s=1.0×10^{-13}m^2/s，M_ϕ^A=11.63 m^{3}K/sJ，M_ϕ^B=11.52 m^{3}K/sJ，W^A=1.069×10^4 J/Km^3，W^B=1.064×10^4 J/Km^3，$\bar{\varepsilon}$= 8.785×10^{-6} (J/mK)$^{0.5}$.



(a) ψ = 0 degree



(b) ψ = 5 degrees



(c) ψ = 30 degrees

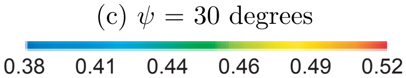
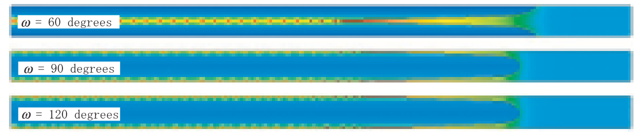
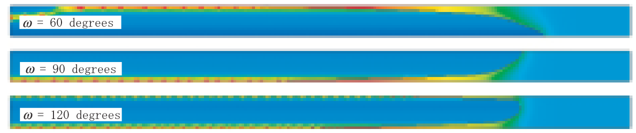


Fig. 3 Effects of the width w and the preferred crystal orientation ψ on the microstructure at the steady state (ω = 90 degrees, t = 26400 μs).



(a) ψ = 0 degree



(b) ψ = 5 degrees

Fig. 4 Effects of the wetting angle ω on the microstructure at the steady state (w/λ = 0.85, t = 26400 μs).

3 解析結果

図 2 は，解析領域幅の広い $w = 44\mu m$ の場合の定常成長時の界面形態を示している．この解析においてのみ，上下境界に周期境界を導入している．図 2(a) は結晶の優先成長方向が温度勾配方向と同じ場合（$\psi = 0$ 度）の結果である．この時，$w = 44\mu m$ の領域において 17 個のセルが生成している．このため，平均一次アーム間隔 $\lambda \approx 2.59\mu m$ となる．図 2(b) は優先成長方向が温度勾配方向から 30 度傾いた場合（$\psi = 30$ 度）の結果である．

3.1 解析領域幅と結晶方位の影響 図 3 は解析領域幅を w=0.42 λ，0.85 λ，1.27 λ，1.70 λ とした場合の定常成長時の界面形態および濃度分布を示している．図 3(a) の ψ=0 度の場合，w/λ の値に対応する数のセルが生成している．図 3(b) の ψ=5 度の場合，解析領域幅 w が大きくなるに従い，半分のセル，偏心したセル，偏心したデンドライトが生成している．図 3(c) の ψ=30 度の場合，$w/\lambda > 1$ の領域で二次アームの成長が著しいデンドライト形態が確認される．$w/\lambda = 1.70$ では二次アームが一次アームの成長より速くなり，固相の濃度分布に周期性が見られる．

3.2 濡れ角度の影響 図 4 は濡れ角度 ω を 60，90，120 度と変化させた場合の定常成長時における界面形態を示している．図 4(a)ψ=0 度の場合，ω=60 度では上下境界に沿ったセルの成長が早く，解析領域中心付近の濃度が高くなっている．ω=90 度と 120 度は同様な結果を示している．図 4(b)ψ=5 度の場合，ω=60 度では下側の境界に沿ったセルが生成し，ω=120 度の場合は偏心したセルが生成している．

4 結言

長繊維を有する金属基複合材料の製造過程を想定し，狭い領域で一方向凝固する合金の微視構造をフェーズフィールド法を用いたシミュレーションにより評価した．その結果，優先成長方向と温度勾配方向が異なる場合，界面形態は領域幅が小さくなるに従い，デンドライト → 偏心デンドライト → 偏心セル → 半分のセルと変化することを示した．また，濡れ角度は 90 度を境にして形態が変化することを明らかにした．

参考文献

(1) Warren, J. A. and Boettinger, W. J., *Acta Metall. Mater.*, **43**-2 (1995), 689 – 703.

(2) Loginova, I., Amberg, G. and Agren, J., *Acta Mater.*, **49** (2001), 573 – 581.