

塑性加工過程の材料組織予測 Phase-Field シミュレーション

神戸大学大学院海事科学研究科マリンエンジニアリング講座

助教 高木知弘

(平成 16 年度奨励研究助成 AF-2004025)

キーワード：Phase-field 法，結晶塑性論，塑性加工，静的再結晶，材料組織

1. 研究の目的と背景

材料が原料から製品となるまでには、凝固、塑性加工、熱処理など様々なプロセスを経験する。製品の諸特性は、最終的な材料組織に強く依存することが知られており、製品の性能を向上させるためには材料組織の適切なコントロールが重要となる。しかしながら、最終的な製品の材料組織は、最終プロセスのみによって決まるものではなく、材料が製品となるまでに経験する各プロセスの影響を受ける。そのため、材料組織を適切にコントロールするためには、各プロセスにおいて形成される組織予測を精度良く行う必要がある。このためには、試行錯誤的な実験による評価は困難であり、コンピュータを援用した数値シミュレーションによる評価が不可欠となる。

材料組織予測の強力な数値モデルとして、Phase-field 法が注目されている。Phase-field 法は、1990 年頃の過冷却融液中からの複雑なデンドライト形態形成¹⁾に成功し、今日では材料工学の様々な分野で用いられている。筆者らのグループでは、この Phase-field 法と、これまで特に材料の強度評価手法として用いられている有限要素法を連成させることで、材料の組織予測からその組織を有する材料の力学的特性予測を一貫して評価可能な数値モデル、さらには力学場に依存する材料組織予測を可能とする数値モデルを構築し、材料加工プロセスにおける材料組織の最適設計および最適プロセス設計を可能とすることを最終的な目的としている。

本稿では、上記研究プロジェクトの第一段階として行っている静的再結晶組織予測手法構築のこれまでの成果を報告する。

2. 静的再結晶^{2,3)}

金属材料を塑性変形させると、材料内部には転位などの格子欠陥が多く導入され熱力学的に不安定な状態になる。この材料を高温度環境に保持し焼なましを行うと、転位をほとんど含まない結晶粒が生成し、高いひずみエネルギーを駆動力として成長する。この過程は静的再結晶と呼ばれており、材料の軟化および組織制御のために行われる⁴⁾。静的再結晶組織は、変形組織に強く依存することが知られており、塑性加工時に形成される変形組織と、熱処理時の再結晶粒の生成と成長を連続して評価することが重要となる。そこで本研究では、変形組織を結晶塑性論に基づく有限要素シミュレーションにより、再結晶粒の生成と成長過程を Phase-field シミュレーションにより評価することを可能とする数値モデルおよび数値シミュレーション手法の構築を行う。

3 数値モデルと解析手順

本研究で構築する静的一次再結晶過程の解析手順は下記の 3 ステップより構成されている。

1. 結晶塑性理論に基づく有限要素シミュレーションにより、多結晶金属材料の変形組織の評価を行う。
2. 1 の結果得られた転位密度 ρ と結晶方位 θ を、再結晶 Phase-field シミュレーションの格子点にマッピングする。ついで、各格子点の転位密度から蓄積エネルギー E_{store} を算出した後に平滑化を行う。また、核生成条件として必要な結晶方位差 $\Delta\theta$ を算出する。
3. マッピングされたデータにもとづき、再結晶粒の生成および成長過程の Phase-field シミュレーションを行う。

3.1 結晶塑性論⁵⁾

結晶塑性有限要素法を用いて、多結晶金属材料の変形組織を評価する。ここでは、結晶粒のサイズ効果を考慮できる、転位論に基づいたひずみ勾配結晶塑性理論を採用する。せん断ひずみ速度 $\dot{\gamma}^{(a)}$ に対する構成式として次の指数側を用いる。

$$\dot{\gamma}^{(a)} = \dot{\gamma}_{ref}^{(a)} \frac{\tau^{(a)}}{g^{(a)}} \left| \frac{\tau^{(a)}}{g^{(a)}} \right|^{1/\kappa-1} \quad (1)$$

ここで、 $\dot{\gamma}_{ref}^{(a)}$ は基準せん断ひずみ速度、 $\tau^{(a)}$ は分解せん断応力、 $g^{(a)}$ は臨界分解せん断応力、 κ はひずみ速度感度指数である。臨界分解せん断応力 $g^{(a)}$ としては、修正 Bailey-Hirsch の式を用いる。

$$g^{(a)} = g_0^{(a)} + a\mu\tilde{b} \sum_{(b)} \sigma_{ab} \sqrt{\rho^{(b)}} \quad (2)$$

ここで、 $g_0^{(a)}$ は初期臨界分解せん断応力、 a は 0.1 のオーダーの係数、 μ は横弾性係数、 \tilde{b} はバーガースペクトルの大きさ、 σ_{ab} は各すべり系間の転位の相互作用を表現する相互作用行列、 $\rho^{(a)}$ は蓄積転位密度である。

すべり系 (a) における蓄積転位密度 $\rho^{(a)}$ は、統計的に蓄積する転位 (SS 転位) 密度 $\rho_s^{(a)}$ と幾何学的に必要な転位 (GN 転位) 密度 $\rho_G^{(a)}$ のスカラー和 $\rho^{(a)} = \rho_s^{(a)} + \|\rho_G^{(a)}\|$ として表わしている。

SS 転位密度 $\rho_s^{(a)}$ の発展式として、次の式を用いる。

$$\dot{\rho}_s^{(a)} = \frac{1}{b} \left(\frac{1}{L^{(a)}} - 2y_c \rho^{(a)} \right) \dot{\gamma}^{(a)} \quad (3)$$

ここで、 $L^{(a)}$ は可動転位の平均運動距離、 $\rho_0^{(a)}$ は初期転位密度、 y_c は転位消滅に関する特徴長さである。

GN 転位密度 $\rho_G^{(a)}$ は、刃状成分 $\rho_{G,edge}^{(a)}$ とらせん成分 $\rho_{G,screw}^{(a)}$

により構成されるベクトル量であり、その大きさは $\|\rho_G^{(a)}\| = \sqrt{(\rho_{G,edge}^{(a)})^2 + (\rho_{G,screw}^{(a)})^2}$ と表される。また各成分は、それぞれ下記のようにせん断ひずみ速度の勾配 $\dot{\gamma}_j^{(a)}$ に依存した発展式から算出する。

$$\dot{\rho}_{G,edge}^{(a)} = -\frac{1}{b} s_j^{(a)} \dot{\gamma}_j^{(a)}, \quad \dot{\rho}_{G,screw}^{(a)} = \frac{1}{b} e_{ijk} s_j^{(a)} m_k^{(a)} \dot{\gamma}_j^{(a)} \quad (4)$$

ここで、 e_{ijk} は順列テンソルである。

有限要素には crossed triangles 要素を用い、各三角形要素の転位密度 ρ は $\rho = \sum_{(a)} \rho^{(a)}$ により算出する。

以上のように本モデルでは、臨界分解せん断応力を各すべり系に蓄積した転位密度で表現しているため、転位論に基づく物理的な解釈が可能となる。さらに、GN 転位密度を表わす式(4)の導入により、陽に材料組織サイズの影響を考慮可能としている。

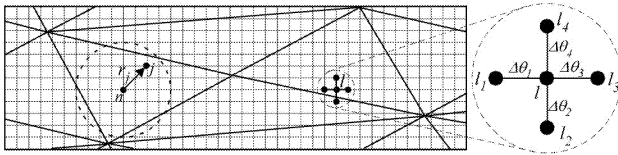


図1 三角形有限要素と Phase-field 規則格子の関係

3.2 データマッピングと平滑化

結晶塑性有限要素シミュレーションの結果得られる、転位密度 ρ と結晶方位 θ を、再結晶 Phase-field シミュレーションの再結晶核生成情報および再結晶粒成長の駆動力として用いる。

ここで、結晶塑性シミュレーションと Phase-field シミュレーションで用いる有限要素の形状およびサイズは異なり、さらに Phase-field 法では連続的に変化する秩序変数を用いるため、駆動力も滑らかに分布させる必要がある。以上の理由により、結晶塑性有限要素シミュレーションの結果を Phase-field シミュレーションで用いるために、転位密度と結晶方位のマッピングおよび蓄積エネルギーの平滑化を行う。

図1に結晶塑性シミュレーションの三角形要素(実線)と Phase-field シミュレーションで用いる規則格子を重ねて示している。Phase-field シミュレーションにおける各格子の転位密度 ρ と結晶方位 θ は、結晶塑性解析の三角形要素の値としてマッピングを行う。つまり、同じ三角形要素内に位置する格子点の値は全て同じとする。また、再結晶粒の成長駆動力となる蓄積エネルギーは、

$$E = 0.5 \rho \mu b^2 \quad (5)$$

を用いて Phase-field シミュレーションの全格子点で算出される。この場合、図1に示す異なった三角形要素に属する格子点の値は異なり、隣接する格子点が三角形要素の辺を跨ぐ場合は、格子点の蓄積エネルギー値がステップ状に変化する。このため、次式で示す Winslow の平滑化法を用いて蓄積エネルギーの平滑化を行う。

$$E_{store}^n = \sum_{j=1}^m E_j w_j / \sum_{j=1}^m w_j \quad (6)$$

ここで、 E_{store}^n は平滑化後の格子点 n における蓄積エネルギーの値、 m は平滑化の対象領域内の格子点数、 j は $1 \sim m$ の局所格子番号、 E_j は式(5)によって算出される局所点 j における蓄積エネルギー値、 w_j は重みであり、ここでは $w_j = 1/r_j$ を用いている。 r_j は格子点 n から j までの距離である。例えば、図1中の格子点 n の例では、平滑化の対象領

域を格子間隔の4倍の半径を有する点線で表わされる円とし、その内部の格子点数が m となる。

また、再結晶核の生成条件として、結晶方位差 $\Delta\theta$ を必要とする。ある格子点における結晶方位差 $\Delta\theta$ は、例えば図1中に示す格子点 l の4つの最近接格子点 l_1, l_2, l_3, l_4 との方位差の最大値と決定する。

以上の方法により、Phase-field シミュレーションの規則格子における結晶方位 θ 、転位密度 ρ 、蓄積エネルギー E_{store} 、結晶方位差 $\Delta\theta$ が決定される。

なお、後述するように、Phase-field シミュレーションではアダプティブメッシュ法を用いているため、ここでの規則格子はデータを保存しておくためのものであり、直接の数値格子では無い。

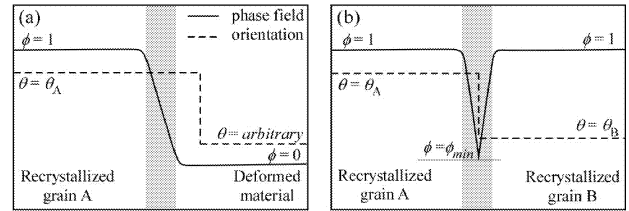


図2 Phase field プロファイル (a) 変形母相と再結晶の粒界 (b) 再結晶粒同士の粒界

3.3 Phase-field モデル

Warren, Kobayashi らによって提案された多結晶凝固 Phase-field モデル⁶⁾を、塑性変形により蓄積されたひずみエネルギーを駆動力とする再結晶粒の成長問題へ適用する。ここで2つの秩序変数を用いる。一つは変形母相中で零、再結晶粒内で1の値を取る phase field ϕ 。もう一つは再結晶粒の結晶方位を表わす θ である。両秩序変数の境界近傍における分布を図2に模式的に示している。変形母相と再結晶粒間の粒界と、結晶方位の異なる2つの再結晶粒間の粒界では ϕ と θ のプロファイルが異なり、変形母相内の θ は意味を持たないとして一定値を用いる。このため、結晶塑性解析により算出される変形母相内の結晶方位分布は Phase-field シミュレーションには反映されず、変形母相と再結晶粒間の粒界エネルギーとモビリティは結晶方位差に依存せず等方的である。これらの秩序変数を用いた自由エネルギー汎関数を次のように表わす。

$$F = \int \left[\frac{\alpha^2}{2} |\nabla \phi|^2 + f_d(\phi) + f_e(\phi, \rho) + g(\phi) s |\nabla \theta| \right] dV \quad (7)$$

これより、 ϕ と θ の時間発展方程式は次のように導出することができる。

$$\dot{\phi} = M_\phi \left\{ \alpha^2 \nabla^2 \phi - \frac{\partial f_d(\phi)}{\partial \phi} - \frac{\partial f_e(\phi, \rho)}{\partial \phi} - \frac{\partial g(\phi)}{\partial \phi} s |\nabla \theta| \right\} \quad (8)$$

$$\dot{\theta} = M_\theta \frac{1}{\phi^2} \nabla \cdot \left[g(\phi) s \frac{\nabla \theta}{|\nabla \theta|} \right] \quad (9)$$

ここで、 $f_d(\phi)$ は $f_d(\phi) = Wq(\phi)$ で表わされるダブルウェルポテンシャルである。ここで、 W はエネルギー障壁、 $q(\phi)$ はダブルウェル関数であり $q(\phi) = \phi^2(1-\phi^2)$ を用いる。 $f_e(\phi, \rho)$ はバルク内の蓄積エネルギー密度であり、変形母相および再結晶粒内の蓄積エネルギー f_e^m と f_e^r および、エネルギー密度分布関数 $p(\phi) = \phi^2(10-15\phi+6\phi^2)$ を用いて、 $f_e(\phi, \rho) = f_e^r(\rho)p(\phi) + f_e^m(\rho)(1-p(\phi))$ によって表される。ここで、再結晶粒内の転位密度は変形母相内の $1/10^5$ 程度といわれており非常に小さいので、 $f_e^r = 0$ 、 $f_e^m = E_{store}$ としている。 $g(\phi)$ は $\phi = 0$ においてこの項の寄与を消去する単調増加関数であり

最も簡単な $g(\phi) = \phi^2$ を用いる。勾配係数 α とエネルギー障壁 W は粒界幅 δ と粒界エネルギー s を用いて、 $\alpha = \sqrt{3\delta s/b}$ 、 $W = 6\sigma b/\delta$ と表すことができる。 M_ϕ と M_θ はそれぞれ ϕ と θ のモビリティであり、 M_ϕ は $M_\theta = M\sqrt{2W}/6\alpha$ と表すことができる。ここで、 M は粒界モビリティであり、 $M = M_0 \exp(-Q/RT) = M_0 \exp(-Q'/k_B T)$ で表される。ここで、 M_0 は定数、 Q 、 Q' は活性化エネルギー、 R はガス定数、 k_B はボルツマン定数、 T は温度である。本モデルの特徴として、粒の回転を考慮できる点があるが、本シミュレーションでは $M_\theta = (1-p(\phi))M_\phi$ とすることで粒回転を抑制している。

式(8)と式(9)の効率的な数値シミュレーションを行うために、アダプティブ有限要素法を導入する⁷⁾。また、式(9)は特異拡散方程式となっており、時間陽解法を用いた場合、非常に小さな時間増分を必要とし解析が不安定となるため、時間に対してはクラーク・ニコルソンの中央差分法を用いている。

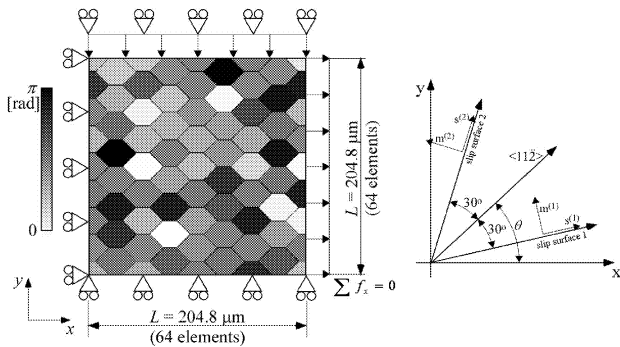


図3 結晶塑性有限要素解析モデルと結晶方位の定義

4 シミュレーション結果

4.1 結晶塑性有限要素解析とデータマッピング

図3は結晶塑性有限要素シミュレーションで用いる解析モデル、境界条件および初期結晶方位を示している。204.8×204.8 μmの正方領域を64×64のcrossed triangles要素で分割し、23個の定型粒モデルを配置している。解析は、2すべり系平面ひずみ問題として純アルミ材を想定して行う。境界条件は、左端面と下端面の変位をそれぞれ x 、 y 方向に拘束し、上端面にひずみ速度 10^{-3} /s を与え、右端面が直線を保ちかつ x 方向節点力の総和が零となるようにしている。用いた物性値は次の通りである： $\kappa = 0.03$ 、 $\dot{\gamma}_{ref}^{(a)} = 0.5$ /s、 $E = 70.3$ GPa、 $n = 0.345$ 、 $\mu = 26.1$ GPa、 $g_0^{(a)} = 6.25$ MPa、 $\tilde{b} = 0.286$ nm、 $a = 0.1$ 、 $\rho_0^{(a)} = 10^4$ 1/mm²、 $y_c = 4.85\tilde{b}$ 、 $n = 0.5$ 、 $\omega_{11} = \omega_{22} = 1$ and $\omega_{12} = \omega_{21} = 0$ 。

図4(a)と(b)は結晶塑性有限要素シミュレーションの結果得られた結晶方位と蓄積エネルギーの分布を示している。各図中の黒い実線は元の粒界を示している。2すべり系モデルを仮定しているため、初期結晶方位が零度もしくは180度に近い結晶粒はそれぞれの方向へ回転が生じており、中間の90度に近い方位を有する結晶粒の微細化が確認される。微細化された結晶粒内では、高い蓄積エネルギーが確認される。図4(c)は結晶方位を規則格子にマッピングして計算された結晶方位差の分布を示している。結晶方位差 $\Delta\theta < 5^\circ$ 、 $5^\circ < \Delta\theta < 10^\circ$ 、 $10^\circ < \Delta\theta < 15^\circ$ 、 $15^\circ < \Delta\theta$ の4段階で表示している。高角粒界を 15° 以上とすると、元々の結晶粒界に加えて粒内部においても高角粒界が形成されていることが確認される。図4(d)は図4(b)の結果

を式(6)を用いて平滑化した結果である。図5は図4(b)と(d)の y 方向の中心位置における x 方向の蓄積エネルギー分布を示している。結晶塑性解析の結果は、三角形要素毎に値が大きく変化しているが、平滑化処理を行うことで分布形態を変えることなく滑らかな蓄積エネルギー分布が得られていることが確認できる。

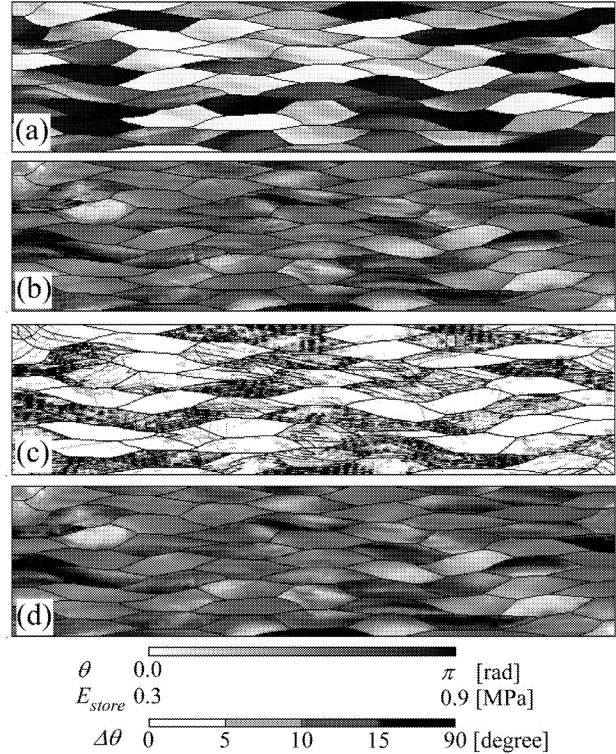


図4 結晶塑性有限要素解析結果：(a) 結晶方位、(b) 蓄積エネルギー、(c) 結晶方位差、(d) 平滑化蓄積エネルギー

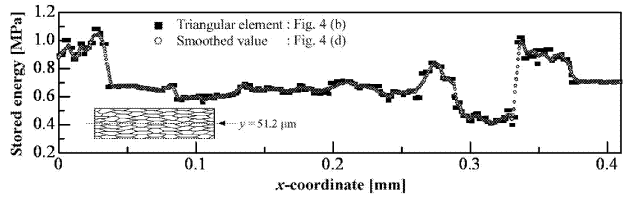


図5 平滑化前後の蓄積エネルギー分布

4.2 Phase-field シミュレーション

再結晶粒の核生成と成長過程が図4(a)(c)(d)の結果に基づいてPhase-field法によりシミュレートされる。蓄積エネルギーにより駆動される粒成長は式(8)と式(9)に従う。核生成は実験的に明らかにされている以下の点に基づき決定される。(i) 高角粒界が必要である。(ii) 高いひずみエネルギーが必要である。(iii) 再結晶核の結晶方位は変形組織中に存在している。(i)より、図4(c)中の黒で示される高角粒界のみが核生成サイトとなりうる。(ii)より、ここでは蓄積エネルギーの閾値 E_c を $E_c = 0.6, 0.7, 0.8$ MPa と仮定する。(iii)より、図4(a)に示される方位が再結晶核の方位として用いられる。上記条件に加え、隣合う核間距離は $10\Delta x$ 以上となるようにしている。これはPhase-field法では有限幅を有する拡散界面を用いているためである。さらに、核生成モデルとして一番初めに全ての核を配置しておくsite saturated nucleationモデルを採用する。

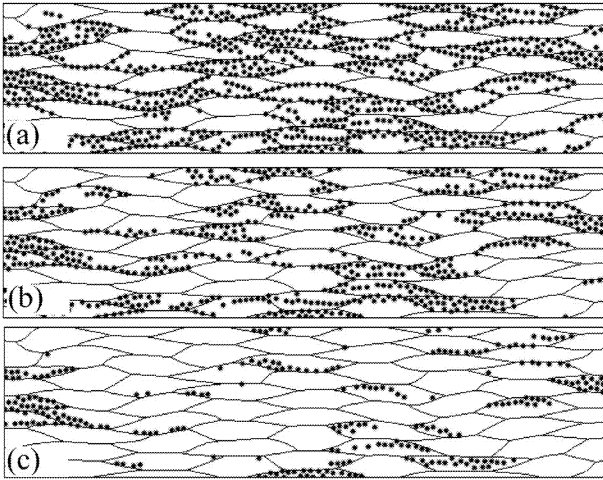


図6 核生成サイト $E_c =$ (a) 0.6 MPa, (b) 0.7 MPa, (c) 0.8 MPa

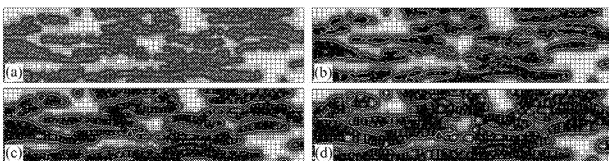


図7 再結晶領域とアダプティブメッシュの時間変化($E_c = 0.7$ MPa) : $t =$ (a) 0 s, (b) 10 s, (c) 20 s, (d) 30 s

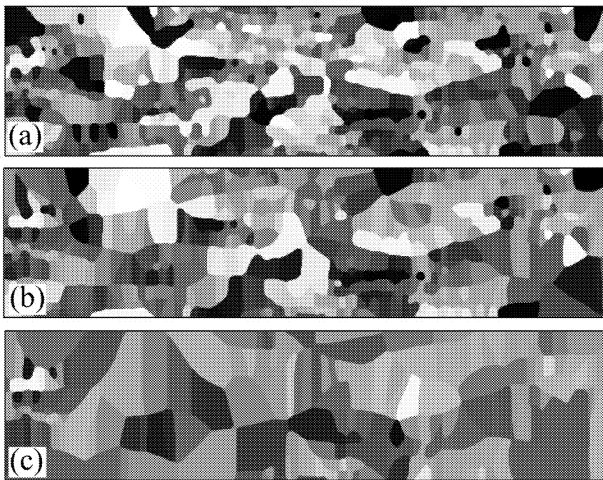


図8 再結晶組織 $E_c =$ (a) 0.6 MPa, (b) 0.7 MPa, (c) 0.8 MPa

図6は上記核生成条件を満足した核生成サイトを示している。図6(a)(b)(c)に対してそれぞれ940, 612, 251の核が形成されている。核の初期核半径は $3\Delta x$ としている。図4と図6を比較すると、仮定した核生成条件に基づいた適切な核生成作業が行えていることが確認できる。これらの条件から再結晶粒成長シミュレーションを開始する。ここで、次のパラメータを用いている： $\Delta x = 0.4 \mu\text{m}$, $\delta = 4\Delta x$, $\sigma = 0.6 \text{ J/m}^2$, $T = 800 \text{ K}$, $k_B = 1.38 \times 10^{-23} \text{ [J/K]}$, $M_0 = 6.2 \times 10^{-6} \text{ [m}^3/\text{Ns]}$, $Q' = 2.08 \times 10^{-19} \text{ J}$, $s = \alpha \sqrt{2W}/\pi$ and $M_0' = M_0$ 。境界条件は ϕ と θ いずれに対しても零ノイマン条件としている。数値シミュレーションはアダプティブ有限要素法を用いて行われる。Level 0 から Level 5 までの6段階の要素を使用し、最も小さいLevel 5の要素サイズは $\Delta x_5 = \Delta x = 0.4 \mu\text{m}$ としている。また、各要素内の ϕ と $\Delta\theta$ 平均値が $0.001 < \phi_{ave} < 0.9$ もしくは $|\Delta\theta_{ave}| > 0.1$ を満たす場合、その要素を細分化し、それ以外の要素を粗大化している。アダプティブ

有限要素の節点はデータマッピングに用いた格子点と対応している。

図7は再結晶粒成長とアダプティブメッシュの時間発展を示している。図6と図7より、再結晶核は元の粒界および細分化された粒内に生じ、低い蓄積エネルギーを有する粒内へ向かって成長していることが分かる。図8は最終的な再結晶組織を示している。いずれの条件においても縦方向に長い結晶粒形状を有する特徴的な組織を示していることが確認できる。以上の結果より、本研究で提案した数値モデルおよび数値シミュレーション手法を用いることにより、実験を行うことなく変形組織に基づいた再結晶組織評価のシミュレーションが可能であることが分かる。しかしながら、図8から分かるように、核生成条件によって再現される再結晶組織は異なっている。このため、今後適切な核生成条件の決定が重要になる。

5 結言

変形組織に基づいた再結晶組織の評価を可能とするため、結晶塑性論に基づいた有限要素法とPhase-field法を用いた連成数値モデルとシミュレーション手法を提案した。また、Warren, Kobayashiらによって提案された多結晶凝固Phase-fieldモデルを、塑性変形により蓄積されたひずみエネルギーを駆動力とする再結晶粒の成長問題へ一般化した。

本研究では、結晶塑性論とPhase-field法を連続して用いる手法を提案した。今後、結晶塑性論の枠組みの中にPhase-field法のアイデアを導入し、材料塑性変形時に形成されるセル組織もしくはサブグレイン形成、および熱間加工時に生じる動的再結晶組織を評価するなどして、研究を進展させて行きたいと考えている。

謝辞

本研究の一部は、財団法人天田金属加工機械技術振興財団平成16年度奨励研究助成(AF-2004025)を得て実施したものである。記してここに謝意を表す。

参考文献

- 1) R. Kobayashi : Physica D, 63 (1993) 410.
- 2) 高木知弘・山中晃徳・比嘉吉一・富田佳宏: 日本機械学会論文集 A 編, 73-728, (2007), 482.
- 3) T. Takaki, Y. Yamanaka, Y. Higa, Y. Tomita : Journal of Computer-Aided Materials Design, 2007 (accepted).
- 4) F. J. Humphreys, M. Hatherly : Recrystallization and Related Annealing Phenomena: Second edition, Elsevier, 2004.
- 5) 比嘉吉一・澤田幸秀・富田佳宏 : 日本機械学会論文集 A 編, 69-679, (2003), 523.
- 6) J. A. Warren, R. Kobayashi, A. E. Lobkovsky, and W. C. Carter : Acta Mater., 51 (2003) 6035.
- 7) T. Takaki, T. Fukuoka, Y. Tomita : Journal of Crystal Growth, 283, (2005), 263.