

固相焼結における粒界形成機構のフェーズフィールドモデリング

Phase-field Modeling of Grain-Boundary Formation during Solid State Sintering

東京農工大学, JST-CREST ○(B)岡田 雄輝, 山中 晃徳, 山本 明保

Tokyo Univ. of Agricul. & Technol., JST-CREST

○Yuki Okada, Akinori Yamanaka, Akiyasu Yamamoto

E-mail: s146938x@st.go.tuat.ac.jp

多結晶超伝導材料の作製方法の一つとして、超伝導化合物粉末を焼結する *ex situ* 法があり、鉄ニクタイト系や MgB_2 超伝導体等の作製に用いられている。焼結で形成する粒界の特性や分布が、多結晶超伝導材料の輸送特性に強く影響するため、焼結中の粒界形成機構を理解することが重要である。実験的な直接観察が難しい粒界形成過程を数値シミュレーションにより解析する方法として、フェーズフィールド(PF)法がある[1]。PF法は、全自由エネルギー散逸定理に基づき状態変数の時間変化を解析する方法であり、粒界移動のような移動界面問題の強力なソルバーである。PF法は、すでに構造材料の組織形成シミュレーションに応用されているが、固相焼結への適用例は数少ない[2]。とくに、3次元シミュレーションの研究報告はほぼない。本研究では、PF法に基づき固相焼結における粒界形成過程を理解するための3次元シミュレーション手法を構築することを目的とした。また、従来のPF法では考慮されないが、焼結体の巨視的緻密化を表現するために必要な結晶粒の剛体運動を導入したPFモデルを構築するほか、原子の拡散経路が粒界形成へ及ぼす影響を明らかにすることを目指した。

本研究で用いるPFモデルでは、 N 個の結晶粒からなる焼結体の時間変化を表すための秩序変数として、焼結体の密度場 ρ と結晶粒の結晶方位を表す結晶場 $\eta_i (i=1, 2, 3, \dots, N)$ を定義する[2]。また、秩序変数の関数として、系の全自由エネルギー汎関数 F を定義する。 F の単調減少を仮定すると、次式に示す ρ と η_i の時間発展方程式が導出できる。

$$\text{Allen-Cahn 方程式} \quad \frac{\partial \eta_i}{\partial t} = -M_\eta \frac{\delta F}{\delta \eta_i} - \nabla \cdot (\eta_i \mathbf{v}_{adv}(i)) \quad (1)$$

$$\text{Cahn-Hilliard 方程式} \quad \frac{\partial \rho}{\partial t} = \nabla \cdot \left(M_\rho \nabla \frac{\delta F}{\delta \rho} - \rho \sum_i \mathbf{v}_{adv}(i) \right) \quad (2)$$

ここで、 $\mathbf{v}_{adv}(i)$ は i 番目の結晶粒の剛体運動を表す移流ベクトルである。また、 M_η と M_ρ は、それぞれ結晶場と密度場のモビリティである。本研究では M_η は定数を仮定し、 M_ρ は次式で表現した。

$$M_\rho = M_{vol}h(\rho) + M_{vap}\{1 - h(\rho)\} + M_{surf}\rho^2(1 - \rho)^2 + M_{gb} \sum_i \sum_{j \neq i} \eta_i \eta_j \quad (3)$$

ここで、 $h(\rho) = \rho^3(10 - 15\rho + 6\rho^2)$ である。 M_{vol} , M_{vap} , M_{surf} , M_{gb} は、それぞれ体拡散、空孔拡散、表面拡散、粒界拡散に関する拡散モビリティであり、本研究ではこれらの拡散モビリティが焼結体内での粒界形成に及ぼす影響を評価した。

[1] 高木知弘, 山中晃徳, 「フェーズフィールド法 –数値シミュレーションによる材料組織設計–」, 養賢堂 (2012)

[2] Yu U. Wang, *Acta Materialia* **54**, 953-961 (2006).