

## 16章 おわりに（材料組織設計への Phase-field 法の効果的活用について）

多変数系の非線形現象を扱う分野において、現象の予測は工学的に非常に重要な課題であるが、理論のみでこれを達成することは原理的に不可能である。つまり複雑な組織形成の予測を実現する夢の計算手法は存在しない。しかし、実験データと理論を併用して、実際の組織形成を定量的にモデル化することは不可能ではないと思われる。したがって、多変数系の非線形現象を扱う分野では、不可能なことを追い求めるよりも、可能な部分を系統的かつ定量的に積み上げ、それをモデル化・データベース化していく方法論が現実的である。計算組織学における Phase-field 法の活用もこの立場を採用する。以下では、Phase-field 法を材料設計やプロセスシミュレーションにどのように活用すると効果的かについて説明する<sup>(1-3)</sup>。

### 16-1 組織形成のモデル化法としての Phase-field 法

合金状態図研究分野の歴史的発展過程から、Phase-field 法の活用法に示唆が得られる。過去およそ40年にわたり、合金状態図の熱力学データベースの蓄積が進められ、現在、合金状態図計算は Thermo-Calc や Pandat などの市販のソフトを中心に実用段階を迎えている。Phase-field 法による材料組織設計は、この状態図分野にて実証された研究手法を、材料組織形成一般に拡張した方法論とみなすと理解しやすい。以下ではまず始めに合金状態図の研究分野における研究手法を説明し、続いて、これを組織形成一般に拡張する考え方を説明する。

計算による合金状態図研究の分野は、「理論状態図」と「計算状態図」に大別される。「理論状態図」は、実験データなしに理論的な面から状態図を計算することを目的とした分野であり、例えば、電子論の第一原理計算による内部エネルギー評価とクラスター変分法によるエントロピー計算を併用した状態図計算法がその典型例である。つまり、究極的には周期表のみから状態図を非経験的に算出することを目指した研究である。もちろん、これは最も理想的な状態図計算の論理であるが、現時点では未だ、現実の状態図が定量的に再現できるまでには至っていない。真に定量性を持って、実際の状態図が理論状態図として計算できるのは、やはり当面まだ先の話しであろう。

一方、「計算状態図」は、CALPHAD 法に代表される状態図の研究手法である。これは、状態図に関係するあらゆる実験データを利用して、現実の状態図を正確に再現できるように、化学的自由エネルギー関数をフィッティングによって決定する方法である。化学的自由エネルギー関数としては、通常、副格子モデルが採用される。副格子モデルでは、原子の配置エントロピーに点近似を採用し、実際の状態図を再現するために、内部エネルギー項を副格子濃度や温度の展開式にて表現する。したがって、この副格子モデルにおける自由エネルギー関数の近似の精度は、クラスター変分法に比較すれば明らかに低い。しかし現実の状態図を定量的に再現でき、かつ自由エネルギーが比較的単純な関数にて表現できるので、実用的な利点は非常に大きい。つまり「計算状態図」はモデルの精度を若干犠牲にして、実用性を優先した方法論である。この計算状態図の利点の1つに、状態図研究に必要な実験数の低減を挙げることができる。例えば実験のみから状態図を決定するために100個の試料が必要である場合を考えると、計算を併用すれば10個の試料で済む場合がある。いわば合金組成1%置きの実験を実験して状態図を実験的に決定する場合と、10%置きの実験とそのデータを用いた計算状態図解析が同じ結果をもたらすことを意味する。また実験困難な温度および組成における状態図を、実験可能な状態図データから補完することも出来る。さらに、上述したように内部エネルギーと配置エントロピー間のエネルギーバランスに近似の問題があっても、自由エネルギー自体には定量性が期待できるので、準安定状態の解析や、駆動力を基礎とした速度論の議論を定量的に行うこともできる。さらにこの「計算状態図」を有用せしめた要因は、熱力学データベースという概念である。ある特定な合金系のみが、副格子モデルにて表現されていても、単にその合金系特有の各論としての実用性しかない。しかし、各種の2元、3元ひいては多元系の自由エネルギーが全て、副格子モデルを基礎とした自由エネルギー関数にて表現されたことによって、熱力学データベースという構想が生まれ、各論を超えた汎用的な状態図の活用が可能となったわけである（データベースとは各論を一般論に変換するマジックである）。

さて以上の考え方は、状態図を対象とした方法論であるが、Phase-field 法を用いた材料設計は、この「計算状態図」の概念を組織形成にまで拡張したアプローチと考えると理解しやすい。すなわち、「理論状態図」に対応する概念を「理論組織形成」、ならびに「計算状態図」に対応する概念を「計算組織形成」とする。これら「理論組織形成」および「計算組織形成」は仮に設定した造語で一般的な名称ではない。これらは「理論状態図」および「計算状態図」に対応する概念であるので、

それぞれ、"非経験的な組織形成過程の予測"、および"実験データを全て利用した組織形成のモデル化"を意味する。「理論組織形成」は組織形成の計算機実験の理想ではあるが、理論状態図すら定量的に計算困難な現段階では、工学的な研究の対象にはなりえない。ここで、「計算状態図」と「計算組織形成」の解析手法等を比較した結果を表1に示す。中央の列が「計算状態図」で、右が「計算組織形成」であり、上段から、関係するエネルギー、エネルギー評価法、エネルギー減少過程の計算手法、およびその表現形である。

表1 「計算状態図」と「計算組織形成」の比較

	計算状態図	計算組織形成
エネルギー	・化学的自由エネルギー	・組織自由エネルギー (化学的自由エネルギー +界面エネルギー +弾性歪エネルギー +電磁気エネルギー)
エネルギー評価法	・Calphad 法 (副格子モデル)	・Phase-field 法 ・Calphad 法 (副格子モデル) ・(秩序変数勾配) <sup>2</sup> 近似 ・マイクロメカニクス ・マイクロマグネティクス ・強誘電体ドメイン形成理論
エネルギー減少過程計算	・線形計画法 ・最急降下法	・非線形発展方程式 ・Cahn-Hilliard 方程式 ・Allen-Cahn 方程式 ・LLG 方程式-
表現形	・平衡状態図 ・準安定状態図	・組織一般 (拡散, 無拡散, 拡散変位型 変態, 凝固, 結晶成長・再結晶, 磁性体・誘電体ドメイン, 転位, クラック, …)

まず「計算状態図」では、関与するエネルギーは、化学的自由エネルギーで、エネルギー評価法は、副格子モデルに基づく CALPHAD 法である。平衡状態図は、このエネルギーの最小状態として計算されるので、このエネルギーを減少させる計算方法としては、最急降下法や線形計画法が利用される。もちろん最終的な表現形としてのアウトプットは平衡状態図や準安定状態図である。一方、「計算組織形成」では、関与するエネルギーは、化学的自由エネルギーだけでなく、界面エネルギー、弾性歪エネルギー、および電磁気エネルギー等、全てのエネルギーを考慮する必要がある。これらのエネルギー評価法は、Phase-field 法におけるエネルギー評価法に等しく、化学的自由エネルギーに対して CALPHAD 法 (副格子モデル)、界面エネルギーに対して勾配エネルギー (秩序変数勾配)<sup>2</sup> 近似、弾性歪エネルギーに関連してマイクロメカニクス、磁気エネルギーについてマイクロマグネティクス、さらに電気エネルギーに関して強誘電体ドメイン形成理論等が使用される。つまり、これらエネルギー評価は、これまで材料科学の種々の分野にて発展してきた連続体近似におけるエネルギー評価法を統合したものとなっている。重要な点は、エネルギーはスカラー量であるので、学問分野が異なる場合でも、エネルギーとしては同時に考慮する (足し合わせる等) ことが可能であり、さらにエネルギーには本質的にスケール依存性がないために、異なるスケールの現象もエネルギーを基礎に同時に議論することが可能である点である (解析するスケールが異なっているも、同一の対象を解析しているのであるならば、エネルギーはスケールに依存せず同じ値でなくてはならない)。組織形成過程は、この全エネルギーの減少過程として算出され、このエネルギーを減少させる方法として発展法方程式が定義される。もちろん最終的な、表現形としてのアウトプットは形成組織そのものである。「計算組織形成」の利点は、「計算状態図」の場合と同様で、試行錯誤の実験の低減にある。特に組織形成では時間軸も存在するために、必要十分な実験数を極力低減させることは、工学的に極めて有用であろう (開発コスト、開発期間、実験費の削減に直接結びつく)。学問的にも組織形成がエネルギー論的ならびに速度論的に定量化されるので、様々な恩恵が

得られる。例えば、現象を支配している因子をエネルギーと動力学の面から客観かつ定量的に評価できる。

## 16-2 材料特性を最適化する組織形成の探索法としての Phase-field 法

通常、ナノヘテロ組織形成に影響を及ぼす因子（合金組成、熱処理条件等）は非常に多様であるので、組織形成の基本メカニズムが実験的に解明されても、最適な材料特性を示す組織形態を探索するのに非常に多くの試行錯誤が必要である場合が多い。Phase-field 法は複雑なナノヘテロ組織形成過程を、物理的描像を明確にしつつ、かなり定量的にモデル化できるため、これを設計シミュレーションとして利用することにより、最適なナノヘテロ組織を探索することが出来る。つまり実験的にメカニズムを解明し、その組織形成過程を Phase-field 法にてモデリングした後、シミュレーションを援用して組織最適化を図ることが最も効率的な材料開発法と考えられる。

また近年組織の形態データを用いた特性計算（たとえばマイクロマグネティクス計算による磁気ヒステリシス解析や、内部変数理論や均質化法を用いた応力-歪曲線の計算など）も進められており、Phase-field 法と組織に基づく特性計算を並列化することによって、求める特性を有する組織が一連の組織形成過程のどの条件の下に存在するかをいち早く探索することが近い将来可能となると思われる。

## 16-3 Phase-field 法とマルチスケールシミュレーション

昨今、マルチスケールの計算が種々の分野で活発に進められている。Phase-field 法は、原子シミュレーションとマクロな設計シミュレーションの中間のサイズスケールを有するので、原子サイズのシミュレーションとマクロ設計シミュレーションの仲介役を果たすことができる。

マルチスケール計算の観点から、各スケール間の動的な連成計算も可能と考えられるが、原子スケールのシミュレーションからマクロスケールのシミュレーションへ、定数もしくは組織形態・内部変数の構成式の形式にて情報を繰り込んで受け渡すブリッジ的手法の方が、これまでの資産（それぞれのスケールにおけるシミュレーション手法）を全てそのまま使用することができるので、工学の面からはより現実的と思われる。異なるスケールのシミュレーションを同時に練成して解かなくてはならない場合は、ミクロとマクロの現象がほぼ同じ緩和時間を持つ場合であるが、自然界の階層構造を考慮すると、このような場合は現実にはほとんど存在しないように思われる（唯一、破壊現象がこの例になるかもしれない）。

## 16-4 まとめ

全自由エネルギーを基礎に組織形成のダイナミクスを解析できる Phase-field 法の枠組みは非常に頑健である。特に最近では、Phase-field 法の適用範囲は材料科学・工学のほぼ全域に渡っている。歴史的に材料科学・工学の各分野において、エネルギーを活用していない分野はおそらくないであろう。さらにナノ・メゾ・マイクロスケールにおける不均一体に対する連続体近似でのエネルギー評価法においては、材料科学・工学が最も進んでいると思われる。Phase-field 法は、この進んだエネルギー評価法の恩恵を全て取り入れることができ、さらにそれをダイナミクスまで結びつけることができる方法論であり、この点が現在著しく広範囲に本計算手法が広がっている所以と考えられる。Phase-field 法の枠組みは、材料研究者・技術者にとって貴重な財産となる。なぜならば、材料設計に必要な不可欠な各種分野のスタティクスとダイナミクスの両学問体系がバランスよく含まれており、かつシミュレーション科学へ直接適用できるからである。ここで解説した Phase-field 法を基礎とした材料解析法は、まさに機械技術者における有限要素法に匹敵するような、材料研究者・技術者のツールとなるであろう。現在、機械系の学科で、有限要素法が教えられていない学科はおそらく存在しないであろう。将来、各大学の材料系の教室において、本解析手法が正課となっている日を夢見て筆を置くこととする。

## 参考文献

- (1) 小山敏幸: 日本鉄鋼協会会報"ふえらむ", 9(2004), 240, 301, 376, 497, 905.
- (2) 小山敏幸: 日本金属学会会報"まてりあ", 42(2003), 397, 470.
- (3) 小山敏幸: 第 180・181 回西山記念技術講座「鉄鋼材料の組織と材質予測技術」, 日本鉄鋼協会, (2004), 47.