最小木法によるデンドライト 主軸配列パターンの解析

鈴木俊夫 佐藤 武†

東京大学大学院工学系研究科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 61, No. 5 (1997), pp. 449-455

Spatial Pattern Analysis of Primary Dendrite Arrays Using Minimal Spanning Tree

Toshio Suzuki and Takeshi Sato†

School of Engineering, the University of Tokyo, Tokyo 113

Minimal spanning tree has been applied to the analysis for spatial point distribution pattern of microstructures. The technical remarks on the analysis have been examined by using generated model patterns of square lattice, triangle lattice square inhibition and triangle inhibition models. The number of sample points is an important factor for comparing the patterns of the specimen microstructures with the model patterns and it should be in the same range of numbers for the models and microstructures. Both angular distributions of edges and power spectrum of Fourier transform images of pattern data give useful information for identifying the type of spatial patterns of the microstructure. The array of primary dendrite arms in the uni-directionally solidified nickel-based superalloy samples has been analyzed using the minimal spanning tree. It is shown that the spatial distribution of primary dendrite arms is neither regular nor periodic and is dominated by the square inhibition rule which prohibits primary arms to coexist within a certain distance. The change in the regularity of dendrite array with the growth conditions is quantitatively described from the obtained data.

(Received December 20, 1996)

Keywords: minimal spanning tree, spatial pattern, microstructure, solidification, primary dendrite array, superalloy

I. 緒 言

材料組織は材料の特性と密接に関連し、さまざまな定量的評価が試みられている。しかし、そこでは組織の形状や代表寸法の平均量を取り扱うことが一般的であり、材料組織の配列構造やその乱れを検討することは少ない。最近、このような配列構造の解析に最小木を利用する方法がDussertらによって提案された。彼らは基板上に蒸着したリチウム粒子の空間分布を最小木により解析し、その配列はランダムでなく、なんらかの規則性を持つと推定している⁽¹⁾。その後さらに最小木を用いた解析が試みられ、枝角度分布による試料配向性の検討や一方凝固セルの解析などが行われている⁽²⁾⁽³⁾。

Fig. 1の模式図に示すように、点と点を両端とする線分(以下、枝)から構成される図形をグラフ、グラフのうちすべての点の組を結ぶ経路が唯一であるものを木、そして、枝の総和が最小である木を最小木と呼ぶ。この最小木を利用した解析では、基本格子を段階的に乱れさせた点分布(以下、パ

ターン)を作成し、各パターンに対して求めた最小木の規格化枝長さの平均値 m と標準偏差 σ が描く曲線(以下、 m - σ 線図)を作成する。そして、対象とする材料組織パターンの最小木の(m , σ)値を基本格子に対する m - σ 線図と比較することにより、パターンの特徴を類推していく。したがって、最小木解析によって材料組織の配列構造を同定するには、無数の可能な格子のパターンに対する m - σ 線図を用意し、材料組織のパターンとの比較が必要である。これは実質的に困難であり、同定の十分性は保証されない。また、たとえ材料組織の配列構造が基本的には単純な配列構造を持つとしても、現実の場面でさまざまに変化する組織パターンの区別は難しく、他の情報の参照が必要となる。しかし、最小木解析により組織の平均間隔に対応した枝の平均値とその標準偏差が組織パターンに固有な量として決定されるため、最小木解析は配列構造の特徴やその乱れを定量的に扱うための有力な手法になると考えられる。

本論文では、まず基本的な2次元モデルパターンに対する最小木解析を試み、解析上の特徴を検討した。特に、材料組織への適用に際し問題となるサンプル点数の影響と、枝角度分布とフーリエ変換による配列構造の確認の妥当性を検討し、適用上の問題点を整理した。次に、最小木により一方

† 東京大学大学院生、現在:住友電気工業(伊丹)研究所
(Graduate student the University of Tokyo. Present address:
Itami Research Institute, Sumitomo Electric Industries, Ltd.)

Fig. 1 Schematic drawings of (a) graph, (b) tree and (c) minimal spanning tree.

凝固させた Ni 基超合金単結晶試料のデンドライト主軸の配列構造を解析し、凝固条件による変化を評価した。そして、これらを通じて材料組織の配列構造の評価に対する最小木解析の有効性を論じた。

II. モデルパターンによる最小木解析の検討

対象となる材料組織の配列構造を解析するためには、さまざまな既知のモデルパターンの m - σ 線図が必要である。しかし、材料組織が複雑な幾何学的配置をとる場合は少なく、ランダムな配置や最稠密充填配置、あるいは異方性を反映した格子状配置を取ることが大半である。そこで、典型的な周期構造である正方および三角格子パターン、相互作用により一定距離で排除律が作用する円禁則および正方禁則パターンを取り上げた。そして、これらの m - σ 線図を作成し、サンプル点数による m - σ 線図の変化を検討した。また、パターン構造を推定する上での枝角度分布やフーリエ変換の有効性を論じた。

1. モデルパターンの作成方法

(1) 格子モデルパターンの作成

正方格子、三角格子モデルパターンの作成方法を簡単に述べる。まず、格子状点配列を作成し、各点を格子点位置からランダムに移動させて新たな 2 次元パターンを作成した。各格子点の移動方位を一樣乱数により、移動距離を正規乱数によって求め、点を移動させた。格子点の移動距離を与える正規乱数の標準偏差 ω を変えることにより作成した 2 次元パターンは、三角格子あるいは正方格子を起源とした乱れの異なるパターンとなる。ここでは、初期の格子間隔を 1 とし、 101×101 の領域に約 10000 の点を含む格子モデルパター

ンを作成した。なお、一樣乱数発生には M 系列乱数、正規乱数発生には Box-Mueller 法を用いた。また、正規乱数の標準偏差 ω は 0~3.0 の範囲とした。

(2) 禁則モデルパターン

禁則モデルパターンは、点同士がある禁則距離以下に近づくことを禁止する排除律にしたがって作成した 2 次元パターンである。ここでは、禁則領域が円となる円禁則モデル、禁則領域が正方形となる正方禁則モデルの 2 つを作成した。禁則パターンでは、各点の x, y 座標を一樣乱数で与えて点配列を次の手順で作成した。まず、パターン領域を 100×100 とし、点の x, y 座標を一樣乱数で求めて点を充填していく。充填した点と他の点との距離が禁則距離以下になった場合には、その点に対する座標を新たに求め、再び充填を試みた。なお、禁則距離を変化させることでさまざまなパターンを作成できるが、禁則距離の範囲は 0~0.8 とした。

2. 解析方法

(1) 最小木解析

求めたパターンに対し、Prim のアルゴリズムにより最小木を生成し⁽⁴⁾、規格化した枝長さの平均値 m と標準偏差 σ を次式により求めた。

$$m = m^* / \sqrt{(A/N)}$$

$$\sigma = \sigma^* / \sqrt{(A/N)}$$

ここで、 m^* は最小木枝長さの平均値、 σ^* は最小木枝長さの標準偏差、 A は対象領域の面積、 N はサンプル点数である。この m と σ の値を各モデルパターン毎に m - σ 座標上に表し、 m - σ 線図を求めた。

(2) フーリエ解析

フーリエ変換には、作成した 2 次元パターンより切り出した 256×256 ピクセルの画像データを用いた。各ピクセルの分解能は 8 ビットで、点間隔を約 20、画像データ中の格子点数を約 120 とした。また、フーリエ変換像のパワースペクトルの高調波成分を除去するために、画像データ中のデータ点に正弦波状のなまし加工を行ったほか、釣鐘型の窓関数を用いた。なお、後述のデンドライト主軸配列解析の場合にも、顕微鏡写真倍率を調整し、ほぼ同程度の主軸が含まれるように画像データを作成した。

3. 解析結果

(1) モデルパターンの m - σ 線図

格子モデル、禁則モデルに対する m - σ 線図を Fig. 2 に示す。乱れのない正方格子、三角格子パターンの (m, σ) 値はそれぞれ Fig. 2 の A, B 点に対応し、 $(1, 0)$, $(1.075, 0)$ となる。正規乱数の標準偏差 ω を大きくし乱れを増加させると、 m の値は減少し、 σ の値は増加していく。すなわち、乱れの増加につれ (m, σ) の点は m - σ 座標系上で右下から左上へと変化し、一点に収束していく。この値は、点の座標を一樣乱数で与えたパターンのものと同じであり、均一ランダム分布に対応する。

Fig. 2 m - σ curves for lattice models and inhibition models.

禁則モデルでは禁則距離が 0 の場合に均一ランダム分布となり、禁則距離の増加につれ (m, σ) の点は左上から右下へと移動していく。すなわち、点の分布はランダムでなくなり、局所的な規則性が増加していくことになる。これは、円禁則、正方禁則の場合にそれぞれ、3 回、4 回対称性を持った局所的な配置が生じることに対応する。

円禁則と正方禁則パターンを比較して見ると、禁則距離が小さい場合には両者の m - σ 線図はほぼ一致しているが、禁則距離の増加につれ両者の差はわずかに増加する。しかし、その差は小さく、 m - σ 線図から両者を区別することは難しい。ただし、局所的な規則性を反映した枝角度分布を比較すれば、両者は容易に区別できる。

(2) m - σ 線図のサンプル点数依存性

Fig. 2 の実線で示したモデルパターンの m - σ 線図を求める際には、誤差を小さくするためにサンプル点数を約 10000 とした。しかし、通常の方法で観察する組織画像の中に 500 を越える組織が含まれることはまれである。したがって、実際の材料組織を解析する場合には、モデルパターンの m - σ 線図のサンプル点数依存性を予め知っておく必要がある。

サンプル数が減少した場合の正方格子、正方禁則モデルパターンの m - σ 線図の変化をそれぞれ Fig. 3 に示す。各モデルパターンに共通する点として、サンプル点数の減少につれ、曲線は右上へと移動し、枝長さの平均値が増加している。これは、サンプル点数が少なくなると、抽出領域の境界付近の点の比率が増加するためである。すなわち、境界近傍の点は境界線のすぐ外にある最近接点と枝を形成できず、境界近傍の枝の長さは大きくなって枝長さの平均値が増加することになる。

以上の結果から、(1) 試料組織の解析では試料と同程度のサンプル点数のモデルパターンの m - σ 線図が必要なこと、(2) サンプル点数が少ない場合には誤差が大きくなるので信頼区間を含めた m - σ 線図で表すことが現実的であること、の 2 点がわかる。そこで、サンプル点数約 200 の格子モデルパターンおよび禁則モデルパターンの各 m - σ 線図とその 95% 信頼区間を求めた。ここでは、前述のサンプル点数約 10000 のモデルパターンから約 200 のサンプル点が含まれる正方領域をランダムに切り出し、そのパターンに対する $(m,$

Fig. 3 Change in m - σ curves for square lattice and square inhibition models with decreasing number of sample points.

$\sigma)$ を計算する。この操作を 1000 回繰り返すことにより、1 つの乱れに対応したパターンの (m, σ) の平均値と 95% 信頼区間を求めた。その結果を Fig. 4 に示す。後述のデンドライト主軸配列の検討にはこれを用いている。

(3) モデルパターンの識別

組織パターンの配列構造を m - σ 線図のみによって推定することが困難であることは前にも述べた。実際、正方格子パターンの場合に比べ、長辺-短辺比が 1 に近い矩形格子パターン枝長さの平均値はやや小さく、頂角が $\pi/2$ に近い菱形格子パターンでは大きくなるが、サンプル数による m - σ 線図のばらつきを考えると、これらのパターンの区別は現実的に不可能である。また、小領域の正方格子パターンが複数集まったものは、その領域の大きさと格子方位によって正方格子あるいは正方禁則パターンの m - σ 線図に近いものになる。したがって、材料組織に対する一定の予見無しに配列構造を推定することは難しく、以下の議論もその範囲での定性的なものにとどまる。

前述のように、格子モデルパターンと禁則モデルパターンは m - σ 線図によって容易に識別できるが、三角格子と正方格子および円禁則と正方禁則を m - σ 線図では識別し難い。しかし、後者についてはパターンの対称性が異なるので、枝角度分布の比較により区別ができる。ただ、上述のように正方格子からずれた矩形格子パターンの枝の平均値は小さくなり、正方禁則パターンとの区別が難しくなる。このような場合には、フーリエ変換像のパワースペクトルが有効な情報となる。

一例として、乱れがさほど大きくない場合の正方格子および正方禁則モデルパターンの最小木の枝角度分布とフーリエ変換像のパワースペクトルを Fig. 5(a)(b) に示す。ここで、枝角度分布は各枝の水平方向に対する角度で整理した頻度分布である。いずれのモデルパターンも枝角度分布ではほぼ $\pi/2$ 毎に枝頻度が高くなっており、枝角度分布による両者の区別は難しい。これに対し、それぞれのパターンのフーリエ変換像のパワースペクトルでは両者に明瞭な差異が認められ

Fig. 4 m - σ curves and their 95% confidence range for models with about 200 sample points.

Fig. 5 Angular distribution of edges and power spectrum of Fourier transform image of model patterns. (a) square lattice model (b) square inhibition model.

る。正方格子モデルでは4回対称位置に点配列の周期性を示す強いピークが観察できる。これに対し、正方禁則モデルパターンでは明瞭な4回対称性のピークは見られず、長範囲の規則性がないことがわかる。なお、禁則モデルには枝角度分布に見られるような局所的な規則性が存在し、分布はランダムでない点に注意する必要がある。このように、パターンの構造を識別するには m - σ 線図に加え、枝角度分布とフーリエ変換像のパワースペクトルを参照して長範囲の規則性を検討することや、パターンの性質について物理的に考察することも必要となる。

4. まとめ

ここでは、最小木解析における留意点を検討し、次のような点を明らかにした。最小木解析に用いるモデルパターンの

m - σ 線図はサンプル点数に依存するため、解析試料とほぼ同数のサンプル点を持つモデルパターンの m - σ 線図を用意する必要がある。また、その信頼区間を求めておくも重要である。こうして求めたモデルパターン m - σ 線図と対象組織パターンの (m, σ) 値の比較により組織の配列構造を推定するには、枝角度分布やフーリエ変換像のパワースペクトルを参照して、パターンの性質を総合的に検討する必要がある。

III. 最小木法によるデンドライト主軸配列の解析

デンドライト主軸は成長方向に垂直な面ではほぼ規則的に配列していると言われている。しかし、その配列を詳細に検討すると、正方形、長方形、六角形配列のほかにもランダムな配列をとる場合もあることが報告されている⁽⁵⁾⁽⁶⁾。このようなデンドライト主軸間隔の測定法についてもいろいろと議論されてきたが、一方向凝固試料では成長方向に沿った面に整理した一群のデンドライトを選び出し、その間隔を求めるのが正確とされている。しかし、この方法は観察面の注意深い選択が必要であり、主軸間隔が変化する非定常部での適用が難しい。このため、成長方向横断面を観察し、観察面積 A をその中のデンドライト主軸数 N で除した値の平方根 $\sqrt{A/N}$ を主軸間隔とするのが一般的である。この場合にも主軸の配列に依存する係数 B を掛けた値 $B\sqrt{A/N}$ が正しいとされる⁽⁶⁾。デンドライト主軸が格子状に配列している場合には、この係数は最小木解析における規格化した枝長さの平均値 m に対応する。したがって、最小木解析を用いればデンドライト主軸の配列構造を同定し、配列の乱れが大きい場合にも係数 B の値を決定できることになる。また、枝の標準偏差によって配列の乱れを定量的に評価し、凝固条件との関連を検討できる。そこで、一方向凝固した試料のデンドライト主軸に対する最小木解析を試み、その配列構造の特徴と凝固条件による変化を検討した。

1. 解析方法

解析に供した試料は、以下の手順で一方向凝固させた単結晶鋳造用Ni基超合金CMSX-2(組成: Co 4.6, Cr 8.0, Al 5.6 Ti 0.9, Ta 5.8, Mo 0.6 W 7.9, Ni 66.6 mass%)である⁽⁷⁾。まず約0.5 kgの合金をアルゴン雰囲気中で高周波溶解し、1823 Kまで過熱した。これを1573 Kに加熱した鋳型に鋳込み、鋳型を2.8, 8.3, 14×10^{-5} m/sの速度で引き下げて一方向凝固させた。なお、鋳型の下部には種結晶を設置し、試料を単結晶化させた。試料は種結晶結合部、絞り部、プラットフォーム部の3つの部分からなり、その形状をFig. 6に示す。デンドライト組織の観察位置は各鋳型引き下げ速度の試料でプラットホーム部下方5, 10, 20 mmの位置とした。なお、簡単な解析によれば、凝固界面がプラットフォーム部に近づくにつれ温度勾配は増加し、成長速度は遅くなる。

デンドライト組織の顕微鏡画像をCCDカメラによりパソコンに取り込み、その画像データから所定測定面積中のデン

Fig. 6 Schematic drawing of a sample shape.

ドライ主軸位置と主軸数を読み取った。これよりデンドライト主軸位置をサンプル点とする2次元パターンを作成し、各パターンの (m, σ) 値を求めた。これを前述のモデルパターンの m - σ 線図と比較するとともに、最小木の枝角度分布、フーリエ変換像のパワースペクトルを参照し、配列構造を検討した。

2. 解析結果および考察

(1) デンドライト主軸の配列構造

デンドライト試料の作成条件、最小木により求めた枝長さと標準偏差を Table 1 に、モデルパターンの m - σ 線図と各試料の (m, σ) 値を Fig. 7 に示す。鋳型引き下げ速度が小さく、プラットフォーム部に近い試料 No. 1 の (m, σ) 値は、正方格子モデルパターンの m - σ 線図にはほぼ一致している。しかし、他の試料の (m, σ) の値は正方禁則モデルパターンの m - σ 線図と対応し、規則的な配列構造を持たないことを示唆している。そこで、両者の典型である試料 No. 1, No. 6 について、最小木の枝角度分布とフーリエ変換像のパワースペクトルを比較、検討した。

Fig. 8(a) (b)にそれぞれ試料 No. 1, No. 6 の枝角度分布とフーリエ変換像のパワースペクトルを示す。試料 No. 1 では、枝角度分布に4回対称性が見られ、フーリエ変換像のパワースペクトルにも4回対称位置にピークが観察される。これらの結果から、試料 No. 1 のデンドライトはほぼ正方格子状に配列していると見てよい。これに対し、試料 No. 6 では、枝角度分布に強い4回対称性が見られるものの、フーリエ変換像のパワースペクトルにはさほど明瞭なピークは観察されない。すなわち、試料 No. 6 のデンドライト主軸配列では長範囲の規則性はあまり見られないことになる。これらの特徴は正方禁則モデルパターンのそれと一致している。この他の試料についても、試料 No. 6 と同様の特徴が見られ、通常の凝固条件下ではデンドライト主軸は禁則律に支配された空間分布を持つと言える。

Fig. 9 に試料 No. 1, No. 6 のデンドライト組織を示す。組織観察から両試料のデンドライト配列構造の差異を見るの

Table 1 Obtained results.

Specimen No.	Pulling rate ($\times 10^{-5}$ m/s)	Distance from platform (mm)	$\sqrt{N/A}$ (μ m)	m	σ
1	2.8	5	160	0.871	0.132
2		10	205	0.840	0.148
3		20	230	0.807	0.160
4	8.3	5	143	0.845	0.135
5		10	157	0.816	0.142
6		20	193	0.798	0.176
7	14	5	139	0.834	0.123
8		10	180	0.825	0.140
9		20	200	0.796	0.179

Fig. 7 m - σ curves of models and determined (m, σ) points of primary dendrite arrays.

Fig. 8 Angular distribution of edges and power spectrum of Fourier transform image of dendrite array patterns. (a) No. 1 (b) No. 6.

は困難だが、デンドライト形態は明らかに異なる。試料 No. 1 のデンドライトは2次枝があまり発達していないセルラードエンドライトに近い。これに対し、試料 No. 6 は2次枝や3

Fig. 9 Microphotographs of dendrite structure. (a) No. 1 (b) No. 6.

次枝の発達した明瞭なデンドライト組織を呈し、2次枝の発達した部分では主軸の抜け落ちも見られる。このようなデンドライト形態の差が配列の差を生むと考えられる。

以上の結果を総合すると、通常の凝固条件下で成長するデンドライト主軸は禁則律に支配された空間分布をしていること、この分布は温度勾配の増加につれて規則的になり、格子状配列に近づくことが結論できる。そして、配列したデンドライト成長では一定距離以内に近づいたデンドライト先端の成長が抑制されること⁽⁸⁾、一方向凝固した合金試料断面では局所的な疎密に関わらずデンドライト主軸配列に一定の波長が存在すること⁽⁹⁾などからしても、上記の結論は妥当と考えられる。

(2) デンドライト主軸間隔と配列の乱れ

前述のようにデンドライト主軸は一般に規則的な配列構造を持たず、規格化枝長さは係数 B に必ずしも対応しない。したがって、最小木により求められる主軸間隔 $m\sqrt{A/N}$ の値も通常の意味でのデンドライト主軸間隔には一致しない。しかし、この値は最隣接する主軸の間隔を抽出した測定値に近いので、これをデンドライト主軸間隔として整理することは自然である⁽⁶⁾。しかし、本解析に用いた試料については組織観察位置での凝固条件を測定しておらず、最小木による主軸間隔と凝固条件の関係を確認することが出来ない。そこで、最小木により求めた枝長さの平均値と標準偏差をプラッ

Fig. 10 Mean edge length and standard deviation of edges vs. distance from the platform.

ットフォーム部からの距離について整理するととどめ、これを Fig. 10 に示す。

プラットフォームに近づくにつれて、いずれの引き抜き速度の試料でも枝長さの平均値は増加し、標準偏差は減少する。プラットフォーム部の近傍では温度勾配は増加し、成長速度は減少するが、後者の変化が大きいと考えられる。したがって、成長速度の減少につれてデンドライト主軸の配列分布の乱れは急速に減少し、整列化が進むと考えてよい。また、プラットフォームを超えると再び成長速度は増加し、乱れも大きくなると予測できる。これらの結果はデンドライト主軸の配列規則性の変化を定量的に記述するもので、最小木解析の有効性を示す一例と言える。

3. まとめ

最小木を用いてデンドライト主軸の配列構造を解析した。その結果、デンドライト主軸は排他律に支配された正方禁則モデルに近い空間分布を持つこと、温度勾配が高くなるにつれて主軸配列の乱れは減少し、配列も格子状の配列に移行することがわかった。これらの結果を通じ最小木解析の有効性を確認できた。

IV. 結 言

本論文では、最小木による材料組織の配列構造解析を試み、その問題点を検討した。その結果、解析試料とはほぼ同数のサンプル点を持つ比較モデルパターンを用意が必要があること、配列構造を検討するためには枝角度分布とともにフ

ーリエ変換像の情報が有効であることを示した。次に、この最小木解析を一方向凝固させた Ni 基単結晶合金試料のデンドライト組織に適用し、主軸配列の構造を検討した。その結果、デンドライト主軸の配列は規則的に配列しているのではなく、排除律に支配された分布をもつこと、また、温度勾配の増加や成長速度の低下につれ主軸配列の乱れは減少し、整列化が進むことを明らかにした。これらの結果は、材料組織の配列構造を検討する手法として最小木解析が有効であることを示している。

文 献

- (1) C. Dussert, G. Rasigni, M. Rasigni, J. Palmari and A. Llebaria: *Phys. Rev.*, **34B**(1986), 3528.
- (2) C. Dussert and G. Rasigni: *Thin Solid Film*, **177**(1989), 245.
- (3) B. Billia, H. Jamgotchian and H. Nguyen Thi: *Metall. Trans.*, **22A**(1991), 3041.
- (4) 奥村晴彦: C 言語による最新アルゴリズム辞典, 技術評論社, (1991), 398.
- (5) H. Jacobi and K. Schwerdtfeger: *Metall. Trans.*, **7A**(1976), 810.
- (6) D. G. McCartney and J. D. Hunt: *Acta Metall.*, **29**(1989), 29.
- (7) 松崎浩之: 東京大学修士論文, (1993).
- (8) H. Esaka: PhD Thesis, Ecole Polytechnique Federale de Lausanne, (1986).
- (9) 鈴木俊夫, 小林史典, 土田 保: 鋳物, **64**(1992), 469.