方位変化に伴う活性化状態を考慮した 結晶粒成長のコンピュータ・シミュレーション

小林正和^{1,*} 高山善匡¹ 加藤 一¹ 中島日出雄²

¹宇都宮大学工学部機械システム工学科

²宇都宮大学工学部情報工学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 65, No. 2 (2001), pp. 85-92
© 2001 The Japan Institute of Metals

Computer Simulation of Grain Growth in Consideration of Reorientation Accompanied with Activated State

Masakazu Kobayashi^{1,*}, Yoshimasa Takayama¹, Hajime Kato¹ and Hideo Nakajima²

¹Department of Mechanical Systems Engineering, Faculty of Engineering, Utsunomiya University, Utsunomiya 321-8585

²Department of Information Science, Faculty of Engineering, Utsunomiya University, Utsunomiya 321-8585

In order to express temperature dependence of grain growth practically, the Monte Carlo simulation using the Potts model has been performed in consideration of reorientation accompanied with activation state. Grain growth is reproduced appropriately at different temperatures by an algorithm used in this study. While little evolution of microstructure is observed at low temperatures, grains grow remarkably at higher temperatures. A lot of 1-site grains are found in a simulated microstructure at high temperatures in the neighborhood of boundaries of comparatively-large grains. This is considered to be formed by large thermal fluctuations at high temperatures. The microstructures obtained from the present simulation are compared with those in previous work. Similar rates of grain growth are observed with and without consideration of a temperature factor of $T=0.55T_m$, though differences in the grain boundary shapes and grain area distributions are found.

(Received June 19, 2000; Accepted December 22, 2000)

Keywords: grain growth, grain boundary, activation process, activation energy, temperature factor, computer simulation

1. 緒 言

近年、計算機の発達とともに材料分野においては物性・組織形成・プロセッシングを検討するために、複雑かつ大規模な計算機シミュレーションが盛んに行われてきている。その中で、電子・原子レベルのミクロなモデルと材料を連続体とみなすマクロなモデルの間を埋めるメソスコピックな組織形成シミュレーションとして、Potts モデルを用いたモンテカルロ法(以下、単に「MC 法」と略記することがある)が挙げられる。この MC 法は比較的簡単な手順で複雑な現象をシミュレートでき、また粒成長や再結晶をはじめとした実際の組織形成過程を良好に再現できる^{1,2)}有力な方法として注目されている。最近では、EBSP 法による実際の組織データを取り込んだ組織形成予測も試みられ³⁾、それを指向した様々な組織学的因子を考慮した解析やシミュレーションアルゴリズムの改良が行われている⁴⁻⁸⁾。

著者らは、前報⁹⁾において実際の組織データを Potts モデルに取り入れる第一段階として、ベクトル法に準じた結晶方位表現を取り入れたモデルによる粒成長のシミュレーションを行った。粒成長の MC 法に実際のデータを取り入れるた

めに残された問題の一つとして、温度因子の考慮が挙げられる。温度因子の適切な設定方法は、粒成長の MC 法が提案されて以来、方位変化の単位となるサイトと原子との関係が必ずしも明確でないために、確立されていないように思われる。よって、サイトと原子との関係を含めて現象の温度依存性を矛盾なく再現できるシミュレーションの確立が必要である。

本研究では、方位変化に伴う活性化状態を考慮して、Potts モデルによる MC 法を基本とする結晶粒成長のシミュレーションを行うことにより、温度因子による粒成長挙動の変化を調べた。また、得られた組織形態および結晶粒度分布を従来の粒成長のシミュレーションと比較検討した。

2. シミュレーション方法

2.1 MC シミュレーション

MC 法は乱数を扱う技法の総称である¹⁰⁾。一般に材料分野で MC 法と言うと、相転移問題に代表される平衡状態分布を求めるための適用が良く知られる^{11,12)}。Anderson *et al.*¹⁾は相転移問題の Potts モデルを使ったメトロポリス (Metropolis) MC 法^{10,11)} (Ising モデル)を修正し、多結晶材料の粒成長シミュレーションを提案した。これは MC 法の新たな適用範囲を与えるものであったと言える。彼らの行っ

* 宇都宮大学大学院生 (Graduate Student, Utsunomiya University)

たシミュレーションは、結晶粒成長過程の成長速度や結晶粒度分布などのトポロジ的な特性が実際の組織に非常に良く合致していることから注目を集めた。また、粒成長速度を含めた数多くの議論と研究成果をもたらした。さらに、複雑な組織学的な因子を取り込むためにモデルやアルゴリズムの様々な修正の試みがなされてきている。ここで用いられているシミュレーション方法は Anderson *et al.* の方法を修正したものがほとんどである。これまでの研究成果から、メトロポリス MC 法による確率過程が粒成長過程を非常に良好に再現できることは確認されている。しかし、平衡状態を議論の対象とし、その状態を得ることを重視するメトロポリス MC 法は、温度因子の影響が結晶粒成長速度に適切に反映されないこと、シミュレーション時間と実時間の対応が明らかでないことなどから組織形成過程をシミュレートするには不向きである。そこで、本研究では粒界が移動する確率を規定する活性化過程¹³⁾と熱浴(Heat bath)法^{11,12)}の確率過程を組合せた粒成長を記述する新しい確率過程を提案し MC シミュレーションを行う。なお、ここで用いた確率過程は活性化過程と緩和過程の遷移確率に Potts モデルの分布関数の形を利用し、温度の規格化として可変なパラメータ T_m (融点)を導入してある。このような確率過程が粒界移動の温度依存性などをどのように再現するかに主眼をおいて提案するものである¹⁴⁾。

2.2 活性化過程を考慮した粒成長シミュレーション

結晶粒成長における粒界移動の駆動力は粒界エネルギーであるが、粒界移動は微視的に見れば界面での活性化状態を経た原子の移動であると言える。粒界面では一方の界面の原子が現在の結合を振切り、より高いエネルギー状態を経て、他方の界面のエネルギー的に安定な位置へと移動する。このような多数の原子の移動によって粒界が移動する。粒界移動が原子の移動によって支配されることは一般的によく認められた考え方である¹⁵⁾。ここで、粒界移動の駆動力は移動前後のエネルギー状態の差であると考えることができる。一般に粒界移動の実験において、粒界移動速度 v と絶対温度の逆数 $1/T$ に対するプロットの傾きは粒界移動における見かけの活性化エネルギーである¹⁶⁻¹⁹⁾。この活性化エネルギーは粒界移動を支配する原子スケールの熱活性化過程に関係付けて考えられる²⁰⁻²²⁾。しかしながら、実験によって得られた値は粒界構造や不純物の影響を含んでおり、それらの影響が温度によって変化することも考えられるので、この取扱いに関しては注意が必要である。このような考えに対して、粒界移動が活性化過程を伴わないとする考え方もある²³⁾。しかし、実験において温度依存が観察されることから、粒界移動を実験同様に Arrhenius 型の温度依存性として設定することは合理的であると言える。

本研究において使用したモデルは 400×400 サイトの 2 次元三角格子 Potts モデルである。2 次元三角格子で分割された格子点の 1 つはサイト(site)と呼ばれ、正六角形の面積 a_{site} を持つ領域であり、その中には多数の原子が規則的な格子配列をなして含まれていると考える。1 サイトは多数の原子の集合体として取扱い、そのサイトには内部の格子配列方

向である結晶学的方位を表す整数が割り当てられる。この結晶方位を表す方位番号を以下に述べるような確率過程に従い変化させて結晶粒成長のシミュレーションを行う。今回のシミュレーションでは、サイトの方角番号を変える方位変化試行は 2 つの段階(Step 1 および Step 2)を経て行われる。

1 番目の段階(Step 1)は、サイトが活性化する過程である。まず、マトリックス中からランダムにサイトを選択する。同方位サイト間には結合エネルギーが存在するとして、そのサイトの結合エネルギーの和を求める。Fig. 1 からわかるとおり、より多くの粒界に関連しているサイトでは結合エネルギーの和は小さく、逆に粒界の関与が少ないサイトでは結合エネルギーの和は大きい。結晶粒内のサイトは結合エネルギーが非常に大きくなる。

(a), (b) および (c) のエネルギー状態を表すと Fig. 2 のようになる。今回のシミュレーションでは、活性化した状態は結晶方位を持たない特別な状態、言うならば溶解したような無秩序な状態として扱われ、そのエネルギーはエネルギー相互作用範囲である隣接シエルの最大エネルギーと等しいと仮定する。相互作用範囲はサイトの周囲 3 周り以内(隣接シエル番号 $k_s \leq 3$: 隣接サイト数 36)とし、前報⁹⁾で行ったサイト間の距離による相互作用エネルギーに対する重み付け Model B 法、すなわち、隣接シエル番号 k_s で相互作用エネルギーを除いて算出する方法を適用する。この条件における隣接シエルの最大エネルギーは単位粒界エネルギーを J とすると $6J/1 + 12J/2 + 18J/3 = 18J$ となる。サイトが活性化するために必要なエネルギーは活性化状態のエネルギー $18J$ からサイトの持っているエネルギーを差し引いた量として次のように表される。

$$E_a = 18J - \sum_{\langle ij \rangle} j_{s_i s_j} / k_s \quad (1)$$

ここで、 $j_{s_i s_j}$ は方位 s_i と s_j 間の結晶間の方位差に依存する粒界エネルギーである。 k_s はサイト間の距離に対応し、エネルギーへの重み付けの大きさと言える。

結合エネルギーを絶ち切ることができた時、つまり、次式のような確率で表される生起条件を満たした時、そのサイトは結晶方位を持たない特別な状態、すなわち、活性状態であるとされる。

$$W_a \propto \exp(-\beta E_a) \quad (2)$$

Fig. 1(a) のようにより多くの粒界に関連しているサイトは、結合エネルギーは小さく、活性化に必要なエネルギーも

Fig. 1 Illustration of bond energies in various sites: Objective sites on grain boundary are shown in (a) and (b), An objective site inside the grain is shown in (c).

Fig. 2 Illustration of energy required in activation process. Figures (a), (b) and (c) correspond to Fig. 1(a), (b) and (c) respectively.

小さくなるので活性化しやすい. Fig. 1(b)のような場合は, サイトの結合エネルギーは(a)よりも大きく, 活性化する確率は低い. Fig. 1(c)のように粒内のサイトは活性化に必要なエネルギーはとて大きいため, 非常に安定であるとされ, 活性化することはほとんどない. ここで, 1 サイトが原子の α 倍の大きさ(長さ)であると仮定すると体積は α^3 倍となる. よって, β は温度 T とボルツマン定数 k_B により温度に依存する定数として $\beta = 1/\alpha^3 k_B T$ と表される. すなわち, シミュレーションは β を小さく取ると高温, 大きく取ると低温状態になる. シミュレーションを行う際には, 材料が融点 T_m に達すると系全体が活性な状態(無秩序な状態)になるような状態 T_m で規格化した式を用いることにした²⁴⁾.

$$W_a = \frac{\exp(-E_a/\alpha^3 k_B T)}{\exp(-E_a/\alpha^3 k_B T_m)} \quad (3)$$

また, これによりシミュレーションの対象となる温度範囲は $0 \leq T \leq T_m$ で与えられることになる.

以上の Step 1 の考え方は, 活性化のためのエネルギー障壁を想定する意味から, ストカスティック(stochastic) MC 法^{12,13)}に対応している.

活性化した後の 2 番目の段階(Step 2)は, 活性化したサイトの次期方位番号を決定する過程である. 活性化状態に達したサイトはいずれかの方位番号の安定した状態に落ち着くことになる. ここで選択される方位番号は活性化前の方位番号とは無関係にサイトのポテンシャルエネルギー U_i の大きさに従う.

$$U_i = \sum_{\langle ij \rangle} j_{ij} / k_s \quad (4)$$

Fig. 3 は方位選択のイメージ図である. ポテンシャルエネルギーの大小(図中の深さ)によって各方位番号の間口が変わり, 低いエネルギーとなる方位番号の方が間口が広く入り易い. この頻度は

$$f_i = \frac{\exp(-U_i/\alpha^3 k_B T)}{\exp(-U_i/\alpha^3 k_B T_m)} \quad (5)$$

で表され, 次期方位は次の式に従う確率で選択される.

$$W_i = f_i / \sum_{n=1}^q f_n \quad (6)$$

すなわち, エネルギー的に安定な方位番号へ変化する確率は大きく, 不安定な方位番号に変化する確率は小さい.

Fig. 3 Illustration of energies on orientation number in re-orientation process.

ただし, 今回のシミュレーションでは, 隣接シェルの最高エネルギーが活性化状態と等しいと与えているので, そのようなポテンシャルを取る方位番号は活性化状態と同程度に非常に不安定であると見なし, その方位番号へ変化する確率は結果的に 0 となっている.

シミュレーションは, Fig. 4 に示すフローチャートに従い実行される. 400×400 サイトの 2 次元三角格子マトリックスに初期組織を読み込む. 初期組織は平均結晶粒面積 $\bar{a}$ が 60 サイト程度になっている組織を用いた. この組織は従来行われてきた結晶粒成長の MC シミュレーションによって作成されたものであり, 結晶方位番号数 q はシミュレーションに十分な 128 方位である. そして, 開始とともに, 上述の活性化を考慮した方位変化試行が繰り返される. 全てのサイトを更新したとき, すなわち, モデルサイズ (400×400) 数回の試行を単位時間 1 MCS (Monte Carlo Steps)²⁵⁾ とし, 時間のパラメータとする¹⁾.

2.3 シミュレーションの条件

シミュレーションを開始するためには, 条件を表すために必要な定数を決めなければならない. 単位粒界エネルギー J や融点 T_m は計算の対象となる材料によって決まる定数である. J は材料のみならず, サイトの大きさ, つまり, モデルの 1 サイトが原子何個分に当たるのかということやシミュレーション時間と現実の時間の変換に関係している重要なパラメータである. 今回は仮想材料として純アルミニウムを想定し, これらの値は次のように与えた.

Fig. 4 Flow chart for simulation of grain growth with consideration of activation process.

実際の材料における粒界移動の活性化エネルギーはいくつかの実験結果によって報告¹⁶⁻²⁰⁾されている。例えば、純アルミニウムの移動の活性化エネルギーは高角粒界で約 60~70 kJ/mol 程度という結果が多いようである²⁰⁾。一方、本モデルにおいては、シミュレーション実行中の値を平均した結果、500~5000 MCS の範囲で粒界に接するサイトが活性化するために必要なエネルギー E_a は 1 サイトあたり約 $10J$ であった。ここで、原子の集合体である 1 サイトが 1 原子の α 倍の長さを持つとするなら、1 サイトの体積は原子量 m 、密度 ρ 、アボガドロ数 N_A から、 $m\alpha^3/\rho N_A$ となり、サイトの体積あたりの活性化エネルギーは $10J\rho N_A/m\alpha^3$ で与えられる。ここで、実験値を 65 kJ/mol とし、シミュレーションによる活性化エネルギーと同等であるとみなすと、

$$10J\rho N_A/m\alpha^3 = 65 \times 10^3 \times \rho/m \quad (7)$$

となり、アルミニウムについて、 $m = 26.98 \text{ g/mol}^{26)}$ 、 $\rho = 2.698 \text{ Mg/m}^3^{26)}$ 、 $N_A = 6.02 \times 10^{23}/\text{mol}$ を代入して、

$$J = (65 \times 10^3 \times \alpha^3) / (10 \times 6.02 \times 10^{23}) = 1.08 \times 10^{-20} \times \alpha^3 \text{ J} \quad (8)$$

となる。

一方、粒界エネルギーから J を考えてみる。アルミニウムにおける高角粒界の粒界エネルギー γ は $324 \times 10^{-3} \text{ J/m}^2$ である²⁰⁾。 $k_s=3$ のシミュレーションの場合、1 サイトの面積あたりの粒界エネルギーは隣接セル内の最大エネルギー $18J$ を 1 サイトの隣接数 6 で割った $3J$ である。1 サイトの面積あたりの粒界エネルギーは、Al 結晶の $\{001\}$ 面の単位面積に対する原子数は原子半径を $1.43 \times 10^{-10} \text{ m}^{26)}$ とすれば約 $1.22 \times 10^{19}/\text{m}^2$ であるから、 $1.22 \times 10^{19} \times 3J/\alpha^2 \text{ J/m}^2$ と与え

られる。従って、 J は、

$$1.22 \times 10^{19} \times 3J/\alpha^2 = 324 \times 10^{-3} \quad (9)$$

から、

$$J = 324 \times 10^{-3} \times \alpha^2 / (1.22 \times 10^{19} \times 3) = 8.85 \times 10^{-21} \times \alpha^2 \text{ J} \quad (10)$$

である。ここで、活性化エネルギーから求めた J と粒界エネルギーから求めた J が等しくなるとすると、

$$1.08 \times 10^{-20} \times \alpha^3 = 8.85 \times 10^{-21} \times \alpha^2 \quad (11)$$

が成り立ち、 $\alpha \neq 0$ であるから、 $\alpha = 0.82$ が得られる。すなわち、活性化エネルギーから求めた J と粒界エネルギーから求めた J が等しいとき、1 サイトはおおよそ原子と同じ大きさであると言える。

しかし、実際には我々の行うシミュレーションにおいてサイトの大きさは原子に比べてかなり大きく(仮に EBSD 解析によるデータの適用を考えるとサイトの 1 辺は $0.1 \mu\text{m}$ ~数十 μm 程度)、1 サイトは多数の原子からなる。上述の計算から、活性化エネルギーと粒界エネルギーから求められる J の間には大きな違いが出てくることが考えられる。多数の原子で 1 サイトが構成されるとき、その体積に関する活性化エネルギーと表面積に関する粒界エネルギーの間に違いが生じることは当然であるとみなされる。1 サイトを多数の原子の集合体として扱う以上、両者の間には何らかの補正が必要になるだろう。

以上のことを踏まえて、今回のシミュレーションにおいては、 J は活性化エネルギーから与えることとする。この場合、原子の α 倍の大きさを持つサイトが活性化するために必要なエネルギー J は式(8)で与えられ、純アルミニウムの融点 $T_m = 933 \text{ K}$ 、 $k_B = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ から、 $J/\alpha^3 k_B T_m$ は、

$$J/\alpha^3 k_B T_m = (1.08 \times 10^{-20} \times \alpha^3) / (\alpha^3 \times 1.38 \times 10^{-23} \times 933) = 0.84 \quad (12)$$

と計算できる。従って、本研究ではこの見積もりに近い値として、 $J/\alpha^3 k_B T_m = 0.8$ を基本として $0.4 \sim 1.0$ を与え、温度 $0.4T_m \sim 0.8T_m$ でシミュレーションを行った。

3. シミュレーション結果

3.1 粒成長に及ぼす温度の影響

Fig. 5 は 3 つの温度条件 (a) $0.40T_m$ 、(b) $0.60T_m$ および (c) $0.80T_m$ における 10000MCS までシミュレートした組織図である。 $J/\alpha^3 k_B T_m = 0.80$ の結果である。図のように、低い温度の $0.40T_m$ では組織の発達は少なく結晶粒は微細であるが、 $0.60T_m$ 、 $0.80T_m$ と温度が高い場合では、結晶粒が成長し粗大になっている。この結果はよく知られた実験結果と合致しており、活性化を考慮したアルゴリズムによって、結晶粒成長を良好に再現できることが確認できる。

シミュレーションに温度による組織形態の違いがでたのは、Fig. 5(a) のような低温では Step 1 の確率が $1/25000$ 程度と相当小さくなり、Step 2 の方位変化へ進むサイトが少ないことに起因すると考えられる。さらに、Fig. 5(a) よりも低温の条件でもシミュレートしたが、今回行ったシミュレーション時間の範囲内において結晶粒の粗大化は見られなかった。反対に高温条件の $0.80T_m$ では非常に大きくなるまで結

(a) 10000MCS, $J/\alpha^3 k_B T_m = 0.80$, $T = 0.40 T_m$ (b) 10000MCS, $J/\alpha^3 k_B T_m = 0.80$, $T = 0.60 T_m$ (c) 10000MCS, $J/\alpha^3 k_B T_m = 0.80$, $T = 0.80 T_m$

Fig. 5 Changes in evolved microstructure at 10000MCS for different temperature: (a) is $T = 0.40 T_m$, (b) is $T = 0.60 T_m$ and (c) is $T = 0.80 T_m$.

晶粒が成長している。その組織には結晶粒界近傍に1サイト結晶粒が数多く存在している。粒界近傍に1サイト結晶粒が存在する理由は、高温状態ではStep 2の変化する方位選択において安定な方位と準安定な方位への変化確率の差が少なくなり、安定な方位と同等の高い確率で準安定な方位へ変化しうるのである。つまり、高温条件ではサイトは非常に活性でかつ熱的揺らぎが大きく、粒界近傍の活性なサイトは盛んに方位変化し、様々な方位を経て安定な方位へと変わると考えられる。

各温度における平均結晶粒面積のシミュレーション時間に対する変化を両対数軸で表したものがFig. 6である。Fig. 5(c)に見ることができるように、粒界近傍に他の結晶粒に比べて十分小さい1サイトや2サイトの結晶粒が数多くあるため、平均結晶粒面積が見た目よりもかなり小さくなってしまう場合がある。本研究のシミュレーション組織は組織変化中のスナップショットであると言えるので、焼なまし後の冷却のような操作を行えば短時間にこれらの小さな結晶粒は消失することが考えられる。実際、本モデルにおいて時間とともに温度条件を下げると粒界近傍の微小結晶粒は消失する

Fig. 6 Changes in the mean grain area during grain growth in each temperature.

(a) 10000MCS, $J/\alpha^3 k_B T_m = 0.4$, $T = 0.6 T_m$ (b) 10000MCS, $J/\alpha^3 k_B T_m = 1.0$, $T = 0.6 T_m$

Fig. 7 Microstructural evolution by different simulation parameter (a) $J/\alpha^3 k_B T_m = 0.4$ and (b) $J/\alpha^3 k_B T_m = 1.0$.

ことを確認している。従って、ここでは平均結晶粒面積を求める際に、2サイト以下の結晶粒を除外して計算した。平均結晶粒面積は時間に対し右上がりの変化を示し、若干ながら下に凸の曲線となっている。温度条件の高いもの程変化の割合が大きい。

3.2 $J/\alpha^3 k_B T_m$ の影響

Fig. 7 は材料に依存する値 $J/\alpha^3 k_B T_m$ を0.40と1.0とした時の温度条件 $0.60 T_m$ における10000 MCSの組織図である。Fig. 5(b)も含めて比較してすぐ分かる通り、シミュレーション結果はパラメータ $J/\alpha^3 k_B T_m$ に大きく影響を受け、同じ温度条件でも異なった組織を発現させる。 T/T_m を固定して

考えた場合、 $J/\alpha^3 k_B T_m$ が小さいとき組織の発達は早く、大きくするに従って組織の発達は抑制され遅くなる。 k_B は定数で、温度は T_m によって規格化され同等であるから、材料によって与えられる単位粒界エネルギー J およびサイトの大きさに関係する α^3 が組織の発達を支配することが確認できる。

Fig. 8 は横軸に規格化されたシミュレーション温度、縦軸に平均結晶粒面積より求めた粒成長指数を各 $J/\alpha^3 k_B T_m$ で示したグラフである。 T/T_m を一つのパラメータとして見ると、各 $J/\alpha^3 k_B T_m$ の粒成長指数は温度の低い側からある温度まで上昇して最大となり、その後値は横這いかやや減少を示す。 $J/\alpha^3 k_B T_m$ が大きい方が高い温度でピークを迎える傾向があり、それぞれ最大値は $n=0.45$ 前後になっている。そして、 $J/\alpha^3 k_B T_m=0.60$ と 0.80 では最大値は $n=0.5$ にかなり近い値となっている。一般に、実験においても粒成長指数の温度依存性は確認されており、高温に近づくに従って指数 n は大きな値となる結果が報告されている^{20,27-30}。本シミュレーション結果も温度の増加とともに粒成長指数が増加し、実験結果に一致することが確認された。古典的粒成長理論では粒成長指数は 0.5 であるといわれている³⁰ が、多くの実験観察において、粒成長指数が 0.5 よりもやや低い値が報告されている。今回行ったシミュレーションでは、2 次元モデル

Fig. 8 Changes in grain growth exponent n in various simulation parameter $J/\alpha^3 k_B T_m$ with temperature parameter T/T_m .

Fig. 9 Changes in grain growth exponent n with simulation parameter $(J/\alpha^3 k_B)(1/T-1/T_m)$.

という制約があるが、温度の高い側で $n \approx 0.4$ 程度ではほぼ一定となる結果が得られた。

Fig. 9 は Fig. 8 の粒成長指数 n をシミュレーションを総合的に支配する値 $(J/\alpha^3 k_B)(1/T-1/T_m)$ で整理し直したものである。 $(J/\alpha^3 k_B)(1/T-1/T_m)$ は式 (1) および (3) から、モデルに対して設定し得る 3 つの値 J , T および α を集約したパラメータとして導かれる。図のように、このパラメータにより、全ての条件の粒成長指数は一義的に表される。Fig. 8 は実際の材料への適用を意識して、材料とモデルのスケールに関する量 $J/\alpha^3 k_B T_m$ と T/T_m に分けて整理したが、今度はそれらを統一して考えることで、シミュレーションモデル自身の振舞いを明らかにすることができる。グラフは $(J/\alpha^3 k_B)(1/T-1/T_m)$ が約 0.25 の所に最大値がある。この最大値の左側は組織中の粒界近傍に熱的揺らぎによる 1 サイト結晶粒が見られる領域であり、発達した組織に対する粒成長指数は小さくなっている。最大値の右側の部分では、粒成長指数は $(J/\alpha^3 k_B)(1/T-1/T_m)=1$ 付近まで大きく減少し、その後、0 に漸近している。

3.3 活性化過程の有無による組織形態の差違

今回のモデルでの $0.55 T_m$ における組織図と従来のモデルの組織図の比較をしたのが Fig. 10 である。従来のシミュレーションは温度 T の影響は考慮せず、 $T \approx 0$ に対応する設定⁹⁾で扱っていた。2 つのシミュレーションとも同一の初期組織から開始されており、それぞれの単位シミュレーション時間 (1MCS) は必ずしも同じ時間を表すものではないが、ほぼ同程度の発達を示している。

(a) 20000MCS, $J/\alpha^3 k_B T_m=0.70$, $T=0.55 T_m$

(b) 20000MCS, ($T \approx 0$)

Fig. 10 Comparison between (a) evolved microstructure in this study and (b) evolved microstructure for the result of conventional MC simulation at 20000MCS.

Fig. 11 Comparison of grain area distributions: (a), (b) and (c) are result of this simulation, (a'), (b') and (c') are result of conventional MC simulation.

それぞれの組織形態の細部を比較すると、従来のモデルの組織図は石鹸の泡が集合したような単純な凹凸を持った結晶粒組織であるのに対して、今回のモデルの組織図は多様な粒界形状、粒界の湾曲がみられ顕微鏡で観察される実際の結晶粒組織と類似している。すなわち、粒界三重点と粒界三重点は直線や一つの湾曲を持つ粒界で結ばれるのではなく、S字形や凹凸のある曲線で構成されている。これらは活性化過程を考慮することによりシミュレーションに温度条件を取り入れることができた結果であると言える。

Fig. 11に $T=0.55T_m$ と今までのモデルにおける結晶粒面積分布を示す。2つの分布は一般に多結晶組織で観察される³¹⁾対数正規分布に近い分布となっている。成長とともにそれぞれその分布は右へ移行している。横軸の分布の頂点位置の移動はほぼ同等な変化を示しているが、分布の広がりには差がみられる。分布は今回行った $0.55T_m$ のものの方が今までのものに比べて分布の広がりが狭くなっていて、尖った形状をしている。従来のシミュレーションの分布は結晶粒度の大きい右側のすそ野が短く、小さい結晶粒度を示す左側のすそ野が長い。一方、活性化を考慮したシミュレーションの場合は左右均等なすそ野の広がり具合になっている。また、前述と同様に熱的揺らぎにより、 $T=0.55T_m$ の分布図では左側に1サイト結晶粒が長時間経過後も残存している。

4. 結 言

方位変化に伴う活性化状態を考慮した結晶粒成長のコンピュータ・シミュレーションを行った。得られた結果は以下のようによまとめられる。

(1) 今回用いたアルゴリズムによって、温度因子をシミュレーションに取り入れることができ、実際の結晶粒成長を良好に再現できることが明らかになった。低温条件では組織は微細なままであったが、高温条件では粗大な結晶粒組織が観察されることが分かった。また、高温条件で粒界近傍に1サイト結晶粒が観察された。これは高温で熱的揺らぎが大きいことを意味すると考えられる。

(2) 各温度条件およびシミュレーションパラメータ $J/\alpha^3 k_B T_m$ で粒成長指数 n を求めた結果、温度の高い側で n は約0.4程度ではほぼ一定となった。

(3) これまでの温度因子を考慮しないシミュレーションと比較を行い、 $J/\alpha^3 k_B T_m = 0.7$ 、温度条件 $T=0.55T_m$ でほぼ同程度の粒成長挙動が得られた。しかし、細かい部分では組織形態および結晶粒度分布に差が確認された。

文 献

- 1) M. P. Anderson, D. J. Srolovitz, G. S. Grest and P. S. Sahni: *Acta Metall.* **32**(1984) 783-791.
- 2) D. J. Srolovitz, M. P. Anderson, P. S. Sahni and G. S. Grest: *Acta Metall.* **32**(1984) 793-802.
- 3) T. Baudin, P. Paillard and R. Penelle: *Scr. Mater.* **36**(1997) 789-794.
- 4) D. J. Srolovitz, M. P. Anderson, G. S. Grest and P. S. Sahni: *Acta Metall.* **32**(1984) 1429-1438.
- 5) G. S. Grest, D. J. Srolovitz and M. P. Anderson: *Acta Metall.* **33**(1985) 509-520.
- 6) Y. Saito and M. Enomoto: *ISIJ Inter.* **32**(1992) 267-274.
- 7) I. Onuma, H. Otani, K. Ishida and T. Nishizawa: *J. Japan Inst. Metals* **58**(1994) 1133-1140.
- 8) T. Shibayanagi, H. Takaya and S. Hori: *J. Japan Inst. Metals* **54**(1990) 650-656.
- 9) M. Kobayashi, Y. Takayama, T. Tozawa and H. Kato: *J. Japan Inst. Metals* **62**(1998) 834-843.
- 10) T. Tsuda: *Monte Carlo Method and Simulation*, (Baifukan, Tokyo, 1992) pp. 1-5, 226-230.
- 11) Y. Kawazoe, M. Mikami and K. Ohno: *Computer Simulation for Matter Science*, (Kyouritu-syuppan, Tokyo, 1997) pp. 127-197.
- 12) T. Nishinaga: *Foundation of Crystal Growth*, (Baifukan, Tokyo, 1997) pp. 89-112, 187-200.
- 13) T. Ito: *OYO BUTURI* **63**(1994) 132-140.
- 14) 本確率過程の平衡分布が Potts モデルのそれと一致するかどうかは自明ではない。両者の関係や、本確率過程の詳細釣り合いの数学的な証明などについては公表準備中である。
- 15) D. Turnbull: *Trans. AIME* **191**(1951) 661-665.
- 16) K. T. Aust and J. W. Rutter: *Trans. AIME* **215**(1959) 820-831.
- 17) J. W. Rutter and K. T. Aust: *Acta Metall.* **13**(1965) 181-186.
- 18) D. A. Molodov, U. Czubyko, G. Gottstein and L. S. Shvindlerman: *Acta Mater.* **46**(1998) 553-564.
- 19) H. Nakashima: *The 4th Int. Conf. on Recrystallization and Related Phenomena (REX '99)*, (Japan Inst. Metals, Vol. 13 1999) pp. 439-444.
- 20) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, (Pergamon, New York, 1995) pp. 85-126.
- 21) V. Novikov: *Grain Growth and Control of Microstructure and Texture in Polycrystalline Materials*, (CRC Press, Boca Raton, 1997) pp. 23-46.
- 22) Byung-Nam Kim: *J. Japan Inst. Metals* **61**(1997) 507-510.
- 23) Y. Saito: *An introduction to the kinetics of diffusion controlled*

- microstructural evolutions in materials*, (Koronasya, Tokyo, 2000) pp. 84-89.
- 24) この規格化は Potts モデルのボルツマン分布の温度を適当に変換したことになる。ここでは T_m は Potts モデルの転移温度とは独立な本確率過程の可変パラメータと考えている。
- 25) Step 1 の活性化状態を経て移動する確率は原子振動数の逆数に対応するとみなされる。しかしながら、サイトは原子の集合体であり、その振動数を決定するには十分な検討を必要とする。そこで、本研究では従来の多くの研究者にならい、MC Step の数と言う意味で MCS を時間の単位として用いる。
- 26) The Japan Institute of Metals: *Data Book of Metals*, (Maruzen, Tokyo, 1997) pp. 6-10.
- 27) J. E. Burke: Trans. AIME **180**(1948) 73-91.
- 28) J. P. Drolet and A. Galibois: Acta Metall. **16**(1968) 1387-1399.
- 29) E. A. Grey and G. T. Higgins: Acta Metall. **21**(1973) 309-321.
- 30) T. Nishizawa: TETU-TO-HAGANE **70**(1984) 1984-1992.
- 31) Y. Takayama: J. Japan Inst. Light Metals **44**(1994) 48-56.