凝固現象のモデル化と計算機シミュレーション (2)*

野上 敦嗣**, 松宮 徹**

野上 敦嗣

松宮 徹

Modeling and Computer Simulation of Solidification Phenomena [2]

by Atsushi NOGAMI** and Tooru MATSUMIYA**

キーワード：凝固，計算機シミュレーション，変態，拡散，核生成，粒成長，結晶成長，モンテカルロ法，組織形成シミュレーション

3. 不均質系のモデル

前回述べた拡散律速型凝固に代表される決定論的モデルにより，系の平均的な振る舞いは充分定量的に記述できる。しかしながら，凝固開始から終了までの組織変化，例えば，冷速・溶質濃度変化による柱状晶から等軸晶への結晶形状そのものの変化を予測するのは難しい。これは，従来の連続体モデルでは核生成現象のモデル化が困難なことによる。核生成現象は関与する因子間の微妙なバランスで成り立ち，より現実的なモデルの構築にはゆらぎ・不均一性を取扱える手法が不可欠となる。その一方策として近年，欧州の研究グループを中心に新しい手法として発展しつつある確率論的なモデル導入による凝固組織形成シミュレーションについて述べる。

なお，確率論的モデルは未だ研究途上の手法であり，確立された手法の解説という本講座の主旨とそれるかもしれないが，大きな可能性を持つ斬新な手法の紹介ということでご容赦いただきたい。

4. 確率論モデルによる凝固組織形成シミュレーション

4.1 モンテカルロ法概要

再結晶時の粒成長を確率論モデル（モンテカルロ法）でシミュレーションする試みはエクソンのグループ¹⁾により始められ，鉄鋼材料への適用も図られている²⁾。この手法は統計物理分野でのイジングモデルを礎として発展し，熱力学と相変態理論で材料の平均的な挙動を記述したマクロモデルと分子（動）力学さらには量子力学に基づき原子スケールでの材料の局所的挙動を記述したミクロモデルとの中間に位置する“メゾスコピック”な手法と考えることができる。材料組織の空間的・時間的なゆらぎ，不均一性の

解析に適している。これまでに粒成長，相変態，再結晶，析出，偏析の計算モデルが各種提案されている^{3,4)}。

モンテカルロ法による組織形成シミュレーションの原理は，材料を多数の微細なセルから構成されていると考え，各セルの取得方位状態や相状態を変えた時のエネルギー変化と系の温度から計算される確率に従って次々にセルの状態を変化させて系全体の状態変化の時間発展を求めていくことである。図1に二次元格子系での状態遷移を例示する。材料を三角格子点を中心としたセルから構成されていると考え，各セルの状態を番号で管理する。太線で示す状態番号の異なるセル境界は粒界/相境界に対応する。結晶粒成長のみを考える場合は，セルの状態番号は結晶方位を表し，状態遷移に関与するエネルギーは隣接する6個のセル（三次元の場合は12個）との界面エネルギーの増減である。図中の網掛けセルの方位状態3から5への遷移の場合，粒界に接した面数が減り界面エネルギーが減少するためこの遷移は無条件もしくは大きな確率で許される。界面エネルギーが増大する場合は遷移確率を $\exp(-\Delta E/kT)$ で与えることが多い。ここで， ΔE はエネルギー増分， k はボルツマン定数， T は温度である。図2に三次元シミュレーションによる結晶成長の様子を示す。計算には $200 \times 200 \times 200$ の三次元三角格子上のセル800万個を用いた。全セルに対して状態遷移を1回試行する単位を1 MCS（モンテカルロステップ）としてシミュレーション中の時間経過を表す。

相変態の場合には，隣接セル間との界面エネルギーの変

図1 二次元三角格子状のセルと方位状態遷移の例

*原稿受付 平成9年7月28日

** 新日本製鐵(株)先端技術研究所 Advanced Technology Res. Labs, Nippon steel Couporation

化に加えて、セル体積分の変態に伴う自由エネルギー変化も考慮する。また方位状態は各相で独立に管理する。図3に鉄の $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態過程のシミュレーション例を示す。

4.2 凝固プロセスのモデル化

モンテカルロ法により多様な粒組織変化を模擬できるが、一方で凝固プロセスで決定的役割を担う熱や溶質原子の拡散の定式化には不向きである。これは統計力学のメトロポリス法を礎とする確率論モデルでは実時間、実空間との対応が不明確なことによる。この問題を克服する方策として、熱伝導、溶質拡散は決定論的方法（差分法、有限要素法）で計算し、揺らぎの影響が大きい核生成、粒成長をモンテカルロ法で取り扱うハイブリッド型モデルが提案されている^{5,6)}。このモデルでは図4に示すように熱・溶質拡散計算用の目の粗い格子（差分メッシュ）と結晶粒組織計算用の細かい格子（セル）を用いる。計算の流れは図5のように、ある時間ステップ内で、まず熱伝導・溶質拡散を差分メッシュで計算した後、核生成・粒成長をモンテカルロ計算を行ない、所望の時間までこれらの計算を繰り返す。1 MCS は時間ステップ Δt に相当するとし、モンテカルロ計算内では温度および溶質濃度は一定とする。1 MCS で新たに凝固したセルの個数を集計して、セルを内包する差分点での凝固に伴う潜熱放出および溶質再分配量を求め、次の差分計算に反映される。

計算に用いる具体的式として Zhu and Smith⁵⁾は以下のように与えている。なお、ここでは差分は単純な一次差分の陽解法の表式に書き直した。

1) 熱伝導計算（差分法）

$$T(x_i, y_i, t + \Delta t) = T(x_i, y_i, t) + (\Delta t \cdot q_i) / (C_p \cdot \rho) + \Delta t / (C_p \cdot \rho) \times [\lambda_1 (T(x_i + \Delta x, y_i, t) - T(x_i, y_i, t)) + \lambda_2 (T(x_i - \Delta x, y_i, t) - T(x_i, y_i, t)) / \Delta x^2 + \lambda_3 (T(x_i, y_i + \Delta y, t) - T(x_i, y_i, t)) + \lambda_4 (T(x_i, y_i - \Delta y, t) - T(x_i, y_i, t)) / \Delta y^2] \dots (1)$$

図2 結晶粒成長の三次元モンテカルロシミュレーション（三角格子での計算を立方体表示した）

図3 $\gamma \rightarrow \alpha$ 変態過程のシミュレーション（ γ 粒界3重点から白色で示す α 粒が生成・成長する）

ここで、 C_p は比熱、 ρ は密度、 q_i は前 MCS 内で凝固したセルによる潜熱放出量、 λ_k は隣接差分要素間の熱伝導率で、2要素の液相率 f_{l1}, f_{l2} および液相、固相の熱伝導率 λ_l, λ_s より次式で求められる。

$$\lambda = [(f_{l1} + f_{l2})/2] \lambda_l + [1 - (f_{l1} + f_{l2})/2] \lambda_s \dots (2)$$

2) 溶質拡散計算（差分法）

$$C(x_i, y_i, t + \Delta t) = C(x_i, y_i, t) + \Delta t \cdot q_c + \Delta t [\{ D_1 (C(x_i + \Delta x, y_i, t) - C(x_i, y_i, t)) + D_2 (C(x_i - \Delta x, y_i, t) - C(x_i, y_i, t)) / \Delta x^2 + \{ D_3 (C(x_i, y_i + \Delta y, t) - C(x_i, y_i, t)) + D_4 (C(x_i, y_i - \Delta y, t) - C(x_i, y_i, t)) / \Delta y^2 \} \dots (3)$$

ここで、 q_c は前 MCS 内で凝固したセルからの溶質再

図4 計算に用いる差分格子とモンテカルロセル

図5 計算の流れ

分配量, D_k は隣接差分要素間の溶質拡散係数で, 2要素の液相率 f_{l1} , f_{l2} および液相の拡散係数 D_l より次式で求められる。

$$D_k = [(f_{l1} + f_{l2})/2] D_l \dots\dots\dots(4)$$

3) 核生成率計算 (モンテカルロ法)

$$Pn(x_i, y_i, t + \Delta t) = A \cdot [\Delta T^2(x_i, y_i, t + \Delta t) - \Delta T^2(x_i, y_i, t)] \cdot S_m \dots\dots(5)$$

ここで, ΔT は過冷度, S_m はモンテカルロ計算用のセルの面積, A は核生成頻度パラメーターである。

4) 結晶成長計算 (モンテカルロ法)

結晶成長計算は固液界面上の液相のセルを対象に行う。相変化による全自由エネルギー変化 ΔF_g はセルのバルク自由エネルギー変化と固液界面数の増減による界面エネルギー変化から四角格子の場合は(6)で与えられる。

$$\Delta F_g = -r^2 \cdot \delta \cdot \Delta H_f \cdot \Delta T(x, y, t)/T_m(x, y, t) \\ (n_{sl}\sigma_{sl} + n_{ss}\sigma_{ss}) \cdot \delta \cdot r \dots\dots\dots(6)$$

ここで, r はセル格子長さ, δ はセルの厚さ, ΔH_f は潜熱, T_m は各格子点の融点 (局所溶質濃度に依存), n_{sl} は固液界面数増分, σ_{sl} は固液界面エネルギー, n_{ss} は結晶粒界面数, σ_{ss} は粒界エネルギーである。 r を変えた時の ΔF_g の最大値 ΔF_g^* を結晶成長のエネルギー障壁として, $\partial \Delta F_g / \partial r = 0$ の関係から(7)式のように求め, 最終的に成長の確率は(8)となる。

$$\Delta F_g^* = (n_{sl}\sigma_{sl} + n_{ss}\sigma_{ss})^2 \delta / \{4 \Delta H_f \cdot \Delta T(x, y, t)/T_m(x, y, t)\} \dots\dots(7)$$

$$P_g(x_i, y_i, t) = \begin{cases} 0 & \text{if } \Delta T \leq 0 \\ \exp(-\Delta F_g^*(x, y, t)/kT) & \text{if } \Delta T > 0 \end{cases} \dots\dots(8)$$

図6にインゴット鑄造組織の計算例を示す。材料物性値はZhu and Smith⁵⁾にあるAl-4.5 wt%Cuを用いた。核生成頻度パラメータ A の値が大きくなれば柱状晶成長が抑制され, インゴット中央の等軸晶領域が拡大することが再現されている。図7は連続鑄造の冷却条件を境界条件として与え, 凝固組織の時間発展の様子を調べた例である。モンテカルロ計算の格子は三角格子を用いている。熱力学パラメーターおよび冷却条件を的確に与えれば, 実鑄片組織を正確に再現できることが分かる。

4.3 研究の展開

計算機シミュレーションの価値は予測性にあるが, 前節で説明したZhu等の方法の特にモンテカルロ法による定式化では経験式および経験的パラメーターに依存しており, 予測性の点では改善の余地が多い。Rappaz等は核生成頻度と結晶成長のより精緻なモデル化を進め^{6,7)}, 特にデンドライトの成長に関しては結晶方位による成長速度の相違を考慮したモデルを提案している。この方法は通常モンテカルロ法の確率論的表式とは異なるため, 彼らはセルラーオートマトンモデルと呼称している。

凝固組織形成シミュレーションは溶融状態を初期条件として開始するが, 固相を初期状態として入熱/溶融ブ

図6 核生成頻度が変わった時の凝固組織変化
(A は核生成頻度パラメータ)

図7 連続鋳造凝固組織の時間変化

ロセスを加えれば、溶接組織形成のシミュレートが可能になる⁸⁾。図8に溶接組織の時間発展の計算例を示す。形態的には溶接組織がよく再現できている。HAZ部の粗粒化現象を正確に再現するためには、固相での結晶粒の粗大化モデルの定式化が必要となる。これには、4.1で紹介したモンテカルロ法による粒成長モデルが適用可能であるが、実時間との対応づけが本質的な課題として残されている。

5. 終わりに

凝固現象のモデル化と計算機シミュレーションの解説を、新しい研究トピックスを含めて紹介した。今日の計算機能力を活用することにより、平均場モデルによる統計的数値予測のみならず、揺らぎや不均質性が内在する結晶粒組織の2次元/3次元構造そのものをシミュレートすることが可能になってきている。

今後、さらに性能向上が見込まれる計算機を前提として、一方では電子構造解析、分子動力学法等より原理的なシミュレーションを用いて、核生成、成長等凝固素過程の理論モデルの確認あるいは新しいモデルの構築を行

図8 溶接プロセスの材料組織変化

うことが望まれる。しかしながら、計算機性能にもやはり限界があるため、凝固偏析あるいはミクロ組織、マクロ組織等全体をシミュレーションするためにはここに述べた連続体モデルあるいはメゾスコピックモデルをベースに、素過程の理論モデルをいかに整合させて取り入れた計算方法を発展させていくかが重要である。

参考文献

- 1) M. P. Anderson, D. J. Srolovitz, G. S. Drest, P. Sahni: Computer simulation of grain growth-I. Kinetics, *Acta Metall.*, 32 (1984), 783-791
- 2) Y. Saito, M. Enomoto: Monte Carlo simulation of microstructural evolution in steel. *Computer Aided Innovation of New Materials*, Elsevier (1991) 809-814
- 3) 齊藤：鉄鋼材料における組織形成過程のコンピュータシミュレーション, *応用数理*, 3 (1993) 225-230
- 4) A. Nogami, T. Matsumiya, Y. Fukuda: Development of Three Dimensional Monte Carlo Simulation Method for Microstructural Evolution, *Inter. Conf. on Computer-assisted Materials Design and Process Simulation*, ISIJ, (1993) 343-348
- 5) P. Zhu, R. W. Smith: Dynamic Simulation of Crystal Growth by Monte Carlo Method-II, *Acta metall. mater.*, 40 (1992) 3369-3379
- 6) M. Rappaz, Ch. -A. Gandin: Probabilistic Modelling of Microstructure Formation in Solidification Processes, *Acta metall. mater.*, 41 (1993) 345-360
- 7) Ch. -A. Gandin, M. Rappaz: A Coupled Finite Element-Cellular Automaton Model for The Prediction of Dendritic Grain Structures in Solidification, *Acta metall. mater.*, 42 (1994) 2233-2246
- 8) M. Rappaz, Ch. -A. Gandin, J. -L. Desbiolles, Ph. Thevoz: Prediction of Grain Structures in Various Solidification Processes, *Metall. Trans. A*, 27 A (1996) 695-705