



アラカルト

若手研究者・技術者へのメッセージ-14

歴史の中の研究

Research and Its History

鈴木俊夫

Toshio Suzuki

東京大学 名誉教授
JFEスチール(株)スチール研究所 リサーチアドバイザー



1 還暦を迎える組成的過冷却の理論

凝固組織形成を語るには、組成的過冷却の理論が欠かせない。この組成的過冷却の理論は1953年にTiller, Jackson, Rutter, Charmersによる論文¹⁾としてActa Metallurgica誌第1巻に掲載された。2013年はちょうど「還暦の年」にあたる。ご存じのように、組成的過冷却の理論は定量的に凝固ミクロ組織形成過程を取り扱う最初のもので、これにより今日に至る凝固理論の基礎が築かれたと言って過言でない。それまでは凝固組織は合金により定まるものとされ、温度勾配と凝固速度により凝固ミクロ組織がセルからデンドライトに変化するなど思い至りもされなかった。そこに組成的過冷却の理論が出現したのだから、そのインパクトの大きさと想像に難くない。それ以降、温度勾配と凝固速度に対して合金のミクロ組織やマクロ組織の変化を報告した論文は枚挙のいとまもない。また、凝固条件を制御した一方向凝固実験の手法が一般化したのも、組成的過冷却の理論のお蔭である。

この組成的過冷却の理論提案から30年たった1984年に、Materials Science and Engineering誌に「凝固ミクロ組織：組成的過冷却後の30年 (Solidification Microstructure : 30 Years after Constitutional Supercooling)」と題した特集号が出版された。客員編集者のH.Jones先生とW.Kurz先生による前書き、W.A.Tiller先生自身の序文の後にはK.A.Jackson先生、R.F.Sekerka先生、J.S.Langer先生、M.E.Glicksman先生、M.C.Flemings先生等々、錚錚たる先生方の論文が並ぶ。今読んでみてもなかなかであるが、なんとと言ってもTiller先生の序文²⁾が一番である。この序文では、組成的過冷却の理論の提案に至る、Toronto大学B.Chalmers先生の物理冶金研究室における大学院生活が紹介されている。当時は半導体技術の発展を背景に、単結晶育成時の欠陥や溶質変動の解明が強く求められていた。Tiller先生とJackson先生はそれぞれ半導体結晶育成におけるbanding、striationをテーマに修士研

究を始めたのである。また、セルサブ組織の形成を論じた博士論文を完成させたばかりのR.W.Rutter先生もポスドクとして研究室に在籍していた。そのような面々が毎朝10時のコーヒブレイクでエネルギーッシュな議論を展開する。このような議論から、界面前方への溶質分配により組成的過冷却領域が形成され、平らな界面はセル界面へと形態変化する、という仮説が完成していく。その興奮が生き生きと伝わってくる。半導体工業からの強い関心という社会的背景と時代性、好奇心に満ちた良き人々との出会いから、新たな学問が生まれたのだ。

組成的過冷却の理論がもたらした界面安定性の概念は一般化され、1963年に提案されるMS理論³⁾へと展開する。MS理論は組成的過冷却の理論で無視された界面エネルギーや固液の温度勾配差を考慮した線形安定性解析理論であり、提案以降さまざまな分野で界面安定性が検証されていく。また、その手法はデンドライト成長解析にも適用され、非線形安定性解析、可解性理論へと発展していく。一方、1966年に発表されたデンドライト2次アーム間隔と部分凝固時間の関係を示すBower, Brody, Flemingsの論文⁴⁾は、鑄造分野に大きな衝撃を与える。この関係が一般的ならば、鑄造材料のミクロ偏析を予測・制御することも可能になる。以後、ほぼ全てと言って良いほどに幅広い実用合金でデンドライト2次アーム間隔と冷却速度の関係が、また包晶反応を含む鋼ではデンドライト1次アーム間隔と冷却速度の関係が求められた。筆者が大学院に進学した1972年は、このように界面安定性の理論的研究と凝固組織とミクロ・マクロ偏析の制御を目指した応用的研究が平行して進んでいく時代であった。

2 中立安定性仮説とデンドライト成長の解析モデル

デンドライトの研究に携わるようになったのは、Chalmers

先生の「金属の凝固 (Principles of Solidification)」⁵⁾のお蔭である。その中に、大過冷度領域でデンドライト成長速度が過冷度2乗則からずれてマクロ界面形状が同心円状に変化する、というJ.L.Walkerのデータが紹介されていた。これに妙に興味をひかれ、過冷デンドライト成長を修士論文テーマに決めた。純金属と合金のデンドライト成長速度と過冷度の関係を実験により求め、得られたデータに定常成長デンドライトの数値解をフィッティングして曲率効果と動的効果を評価していった。これらの結果を博士論文にまとめたのが、1977年である。当時はインゴット鑄造から連続鑄造への移行期、一方向凝固実験の全盛期であった。一方向凝固デンドライトの先端温度を計測した1974年のBurden-Huntの実験⁷⁾など、歴史的な実験も出現する。もちろん、一方向凝固デンドライトの解析モデルも各種提案された。最大成長速度の仮定によりデンドライト先端曲率半径と成長速度の関係を決める、これが常識であった。ところが、1977年初頭にはLanger-Müller-Krumbhaarによるあの中立安定仮説の論文⁶⁾が発表された。確かに読んだ記憶はあるが、何を意味するかよく理解できなかつたし、さほど重要とも思えなかつた。この論文に注目した人は周りにもいなかつたと言いつつするもの、いままさらながら悔しい思いである。

多くの凝固研究者がその意味を掴みかねている中、もの見事に中立安定仮説を組み込んだ一方向凝固デンドライトのモデル⁸⁾を提案したのがKurz先生である。確かに、一連の中立安定仮説の論文では合金系についても述べられているし、MS理論を丁寧な追えばKurz-Fisherの先端曲率半径式は導ける。そう言うのは後知恵であって、やはりKurz先生はすごい。とりわけ先端曲率半径からデンドライト1次アーム間隔への予測モデルに展開するなどは、凝固研究者の真骨頂である。このモデルは対象を過冷デンドライト成長から、当時大流行の急冷凝固デンドライトに広げていく。また、Glicksman先生やR.Trivedi先生との共同研究によってKGTモデル、LKTモデルへと展開し、80年代、90年代の凝固分野を席卷することになる。今でこそ20世紀を代表する両先生だが、その当時の欧州鉄鋼分野ではスイス在住オーストリア人の鑄造研究者ということもあり「Kurz Who?」であった。Trivedi先生にしても著名というほどでもなかつた。先生方はデンドライト成長モデルの発展とともにその名声を不動のものとしていったのである。これについても苦い記憶がある。当時、Al-Cu合金の一方向凝固実験でセルとデンドライトの先端曲率半径と1次アーム間隔を測定していた。Kurz-Fisherモデルはさすがに理解できたが、セル領域が正しく再現されていない、実験で観察される軸対称と回転対称の先端変形モードが考慮できないなどなど、今にして思えば些末なことにこだわり、しばらく無視することにした。ただこれも

長続きせず、数年後にはKurz先生の軍門に下る。

3 フェーズフィールドモデルの台頭

LKTモデルが瞬く間に凝固の応用分野を席卷する一方、物理分野ではデンドライトの先端安定性の理論研究が着々と進行していた。MS理論に端を発した線形安定性理論は、非線形性安定理論、可解性理論へと進んでいくが、この辺りになると筆者には概要把握すらおぼつかない。そこにLanger先生が再び登場する。Ginzburg-Landau型の非線形方程式によりデンドライト成長が記述できるとの指摘¹¹⁾である。これを受けてフェーズフィールドモデル研究は始まるが、まだ狭い理論分野に留まっていた。このフェーズフィールドモデルが材料分野・凝固分野の研究者に急速に広がるきっかけを与えたのが、小林亮先生である。小林先生は独自にフェーズフィールドモデルに到達していた^{12,13)}。そして、1990年に米国のNIST (National Institute of Standards and Technology)を訪れ、講演でフェーズフィールドシミュレーションの3次元画像と2次元アニメーションビデオを披露した。その席にいたJ.W.Cahn先生がこれにいたく感心し、材料分野の研究者にフェーズフィールドモデルの研究を強く勧めたと聞く。こうして提案されたのがWheeler, Boettinger, MacFaddenによる合金系フェーズフィールドモデル (WBMモデル) である¹⁴⁾。これを機に、凝固分野でもフェーズフィールドモデル研究が活発化していく。

WBMモデルの提案された1992年、既に小林先生の数値モデルは一部の学生の評判となっていた。1991年には解説が出され、NISTで披露されたアニメーションビデオも配布されていた。これを早速に入手した学生が研究室に紹介したが、ここでも絶好の機会を逸す。ビデオはいかにも魅力的であったが、なぜこれで良いのかよく理解できない。パラメータ次第でどんな結果も出せる、とひねくれた気分から、研究テーマに取り上げることもしなかつた。その後、折に触れフェーズフィールドモデルの論文をチェックしたり、人の話を聞いたりしているうちに、転機が突然訪れた。1997年のある冬の夕、以前から知っていた金聖均先生に部屋の前で偶然出会った。客員研究員として滞在し明日には帰国するという。フェーズフィールドモデルに興味があるのだ、と言って部屋でいろいろと結果を見せてくれるが、どれも見たような図である。しかしどういう訳か、金先生がこれほどの興味を示すのだからやる価値はあると思い、共同研究を始めることにした。その夏には金先生が2か月ほど滞在、その間にフェーズフィールドモデルを教わり、ほぼ理解した。界面駆動力誤差の補正により計算可能条件を大幅に緩和するKarma-Rappelのthin interface limit model¹⁵⁾が合金系にも適用できる、

WBMモデルでは界面領域での溶質濃度の連続変化を想定するために過剰な自由エネルギーが導入される、計算の不安定さを解消するにはこの過剰エネルギーを差し引けば良いなど、問題点が次々に整理され、その答えもわかっていくのだから、面白くて仕方がない。この頃に書いた解説¹⁶⁾からも当時の高揚感を察していただけるだろう。

金先生の帰国後も研究室でフェーズフィールド解析を進めていたが、翌年の春になり金先生からメールが突然来た。どうも集中できないのでそちらに行っても良いか、との問い合わせである。もちろん否もないのですぐに受け入れを準備し、6月下旬には金先生はやってきた。2週間ほどの短い期間の滞在であったが、驚くほどの集中力で仕事を進める。こちらに時間ができると延々たる議論が始まり、根津の飲み屋で続きがある。あれほど人の話を聞き、議論し、考えたことはない。そんなある日、金先生が界面領域の濃度を決定するために化学ポテンシャルを使うのはどうか、と問い出した。界面領域濃度の矛盾、I.Steinbach先生らの方法¹⁷⁾の一般化などなど、苦悶の末のアイデアである。熱力学の変数構造からして温度と同じに扱えると答えた。次の日には合金系のフェーズフィールドモデル¹⁸⁾ができた。頂上に達した瞬間である。

21世紀に入るとフェーズフィールドモデルは急激に普及し、毎年の発表論文数も100を超える。また、モデルの対象も多元系合金、多相系合金、ファセット結晶へと拡張され凝固解析手法としての地位を確立する。さらに、熱力学データベースと結合した商用コード、オープンソースの開発、スーパーコンピュータによる大規模計算など話題に事欠かない状況が現在まで続いていることは、ご存じのとおりである。

4 若き無名の研究者・技術者へ

これまで、凝固組織形成の理論研究の歴史とその中で筆者の軌跡を述べてきた。大半はぼやき話だが、中には若き無名の研究者・技術者の諸君の参考になりそうなこともある。それらを思いつくままに挙げてみたい。

“何が本物かなかなかわからない”

日常生活は既にあるものの上で営まれるが、研究や開発はこれまでにないものを生み出そうとする。そこで、今ある世界と来るべき世界の狭間で苦悩が生じる。“新しい、新しい”と言いつのる論文が現れては消えていく。駄目なものはずぐにわかるが、本物を見極めるのは難しい。身近な分野で周囲が見えれば見えるほど、やっていることへのこだわりや他人に負けたくないという意地が判断を鈍らせる。そうこうするうちに、どんどん手遅れになる。こうすれば、と言う

ほどの妙案はない。とにかく我慢して幅広く論文を読むことだ。何か生まれる時には社会も大きく変化しているものだが、これを実感することは、なかなか難しい。そこで、年長者の経験談も時には参考にすればよい。年を取り、自分で仕事をしなくなると、思いの外クールな見方もできるようになる。とは言えあくまで参考程度。苦勞したあげくに失敗しても、誰のせいでもない、最後は自分の責任なのだから。

“知っているだけでは役に立たない”

仕事を進めるにはさまざまな知識が必要だ。そう思って勉強することは大いに推奨するが、知識も使えなければ役立つ知恵にはならない。これには自分で使ってみるなどの修練が必要だ。何かを選ぶ時にも知識が役に立つ。ただ、選択の結果を押し量る思考回路を鍛えておく必要はある。このあたりまでは常識の範囲。問題は何かを決断する時だ。決断すれば他の可能性を捨てることになる。ここに悩ましい状況が出現する。情報が足りない、時期尚早だ、などなど、決断を回避する理由はいくらでもある。知識を総動員しても決断に値する理由や根拠は見つからず、どんどん時間が過ぎていく。幸運の女神の前髪を掴むには、自らの直感を信じる必要がある。本当の理由は時間が立たないとわからない。“決断した者のみが事後的に己の決断の真の意味を認識するのだ”と哲学者は語る¹⁹⁾。

“1人でできることはない”

今日の科学技術は1人でできるほど簡単ではない。とはいえ、何人ものスタッフやポスドクを使う大先生はともかく、1人でもなんとか頑張らなくてはいけないことも多い。ところが、研究者は概して狭量で、嫉妬深く、偏見に満ちているので、1人でいると自信過剰と不安の間を揺れ動くことになる。これを解決するのが共同研究者の存在である。良き人と巡り会えば、状況を一変させ、飛躍の機会も生まれる。共同研究者には、何かを求めている人、漠然とした大きなエネルギーを秘めた人が良い。互いに若く無名であれば、失敗しても失うものもなく、本気で挑戦できる。運命共同体として助け合えば、成功の確率も高まる。ただ、そんな運命共同体にも終わりが来ることは覚悟しておこう。研究も一期一会なのだ。

研究・開発は、歴史の流れの中にある。日常の営みの中では何事も起こらないように見える穏やかな流れも、時に激しく変化する。そのような場面に巡り会えば、そのような変化を生み出せば、望外の喜びだ。まだ若く無名の研究者・技術者である諸君にこそ、その喜びを味わう可能性が待っているのだ。

参考文献

- 1) W.A.Tiller, K.A.Jackson, R.W.Rutter and B.Charmers : Acta Metall., 1 (1953) , 428.
- 2) W.A.Tiller : Mater. Sci. Eng., 65 (1984) , 3.
- 3) W.W.Mullins and R.F.Sekerka : J. Appl. Phys., 34 (1963) , 323.
- 4) T.F.Bower, H.D.Brody and M.C.Flemings : Trans. AIME, 236 (1966) , 624.
- 5) B.Chalmers : Principles of Solidification, John Wiley & Sons, New York, (1964) (岡本平, 鈴木章訳 : 金属の凝固, 丸善 (1971))
- 6) J.S.Langer and H.Müller-Krumbhaar : J. Crystal Growth, 42 (1977) , 11.
- 7) M.H.Burden and J.D.Hunt : J. Crystal. Growth, 22 (1974) , 99, 109.
- 8) W.Kurz and D.J.Fisher : Acta Metall. 29 (1981) , 11.
- 9) J.Lipton, M.E.Glicksman and W.Kurz : Mater. Sci. Eng., 65 (1984) , 57.
- 10) J.Lipton, W.Kurz and R.Trivedi : Acta Metall., 35 (1987) , 957.
- 11) J.S.Langer : Directions in Condensed Matter, ed. by G.Grinstein and G.Mazenko, World Scientific, (1986) , 164.
- 12) 小林亮 : 日本結晶成長学会誌, 18 (1991) , 209.
- 13) R.Kobayashi : Physica D, 63 (1993) , 410.
- 14) A.A.Wheeler, W.J.Boettinger and G.B.MacFadden : Phys. Rev. A, 45 (1992) , 7424.
- 15) A.Karma and W.J.Rappel : J. Crystal Growth, 174 (1997) , 54.
- 16) 鈴木俊夫, 金聖均 : まてりあ, 37 (1998) , 184.
- 17) J.Tiaden, B.Nestler, H.J.Diepers and I.Steinbach : Physica D, 115 (1998) , 73.
- 18) S.G.Kim, W.T.Kim and T.Suzuki : Phys. Rev. E, 60 (1999) , 7186.
- 19) 田島正樹 : アエラムック, 76 (2002) , 83.

(2012年11月12日受付)