

特別講演

□第171回春季講演大会学術功績賞受賞記念特別講演
(平成28年3月25日)

合金の凝固過程のモデル化と 組織形態の特性評価

Modeling of Solidification Process and Characterization of
Solidified Structure



*脚注に略歴

大笹憲一
Kenichi Ohsasa

秋田大学大学院理工学研究科
教授

1 はじめに

このたび名誉ある学術功績賞を頂き、大変光栄に存じます。私は昭和52年から大学で、恩師である高橋忠義先生の指導のもとで始めた合金の凝固過程に関する研究を現在まで行ってまいりました。最初は過冷凝固による凝固組織の改善や、铸造欠陥生成機構などに関する実験的研究を中心に行っていましたが、その過程で凝固シミュレーションの有用性を知りました。その後凝固シミュレーションを用いた凝固過程に関する研究を学生達と行い、実験とシミュレーションの組み合わせの有効性を実感してまいりました。今回の受賞は私と一緒に研究を行ってくれた多くの学生達の努力の結果です。本稿では凝固プロセスの研究における凝固シミュレーションの有効性に関する私の感想を述べさせていただきます。

2 凝固過程のモデル化

2.1 マクロ組織形成モデル

凝固のシミュレーションモデルは、潜熱発生を考慮した凝固伝熱シミュレーションが最初に発達しました。続いて、鋳型内での溶湯の流動現象に関する解析が発達しました。1990年頃からは凝固組織予測の試みが始まりました。鋳造材の組織予測が可能になれば、目的とする組織を得るための鋳造方を事前の計算機シミュレーションにより作成することが出来、鋳造工程全体の時間と費用が大きく削減されると思ひ、

凝固組織形成シミュレーションに興味を抱きました。

最初に凝固時のマクロ結晶粒組織形成シミュレーションが発達しました。この方法はモンテカルロ法とセルオートマトン法に大別されます。私が初めて凝固組織形成シミュレーションに興味を持ったのは、SpittleとBrownらのモンテカルロ法を用いた凝固時の結晶粒生成シミュレーションに関する論文^{1,3)}です。物質科学で用いるモンテカルロ法は乱数に基づきエネルギーのより小さい状態を探索するもので、粒成長の場合粒界エネルギーが減少する成長方向を乱数を用いて確率的に探索します。早速この方法を試してみると、実際の結晶粒組織に類似した組織を作り出すことが出来ました。

SpittleとBrownらのモンテカルロ法に対してa) 物理的意味が乏しい、b) 鋳塊内の実際の温度場が考慮されていない、c) デンドライトの優先成長方位などの結晶学的因子がとり込まれていない等の指摘が行われ、GandinとRappazらはデンドライト結晶の結晶学的因子と成長動力学を取り入れたセルオートマトン法^{4,5)}を開発しました。この方法では空間を正方形の領域に分割し、Fig.1に示すようにデンドライトを正方形の板で近似します。各正方形の4つの頂点はデンドライトの優先成長方位 ($\langle 100 \rangle$ 方位、2次元では $\langle 10 \rangle$ 方位) に対応します。デンドライト先端(正方形の頂点)の成長速度はデンドライト成長理論に基づいて合金組成と過冷度に対応して計算されます。KGT (Kurz, Givonola, Trivedi) モデル⁶⁾が良く用いられます。また、核生成モデルとして過冷度に対する核生成頻度をガウス分布(正規分布)で表すモデルが用いられています⁷⁾。

* 昭和52年北海道大学大学院修士課程を修了し、直ちに北海道大学助手として着任した。平成5年に助教に昇任し鉄鋼の凝固研究に従事した。途中、MITへの留学も経験し、平成21年に秋田大学に教授として異動し、金属材料学を担当している。

デンドライト先端の成長速度や核生成速度を計算するために、マクロな伝熱計算と連成させる必要があります。(計算ドメインが小さい場合均一な温度場を与える方法もあります)。マクロな温度場の計算は熱伝導方程式を差分法や有限要素法で計算し、伝熱計算用の比較的大きいメッシュの中にセルオートマトン用のセルを配置します。これにより、各セルは温度を得ることが出来ます。

この方法を用いて一方向凝固実験で得られた凝固組織の再現を試みました。Fig.2 (a) に示す、下部にChillを設置した断熱性の鋳型上部をヒーターで加熱する実験装置でAl-3mass% Si合金を一方向凝固させるとFig.2 (b) のようにChillから柱状晶が成長し、続いて等軸晶領域が出現し、試料上部で再び柱状晶に遷移するおもしろい組織が得られます⁸⁾。核生成頻度を調整することによりシミュレーションで再現したのがFig.2 (c) で、見事に組織が再現されています。しかしながら、

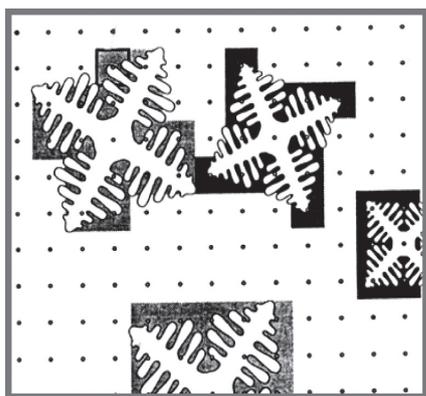


Fig.1 Dendrite envelope used for the CA simulation.

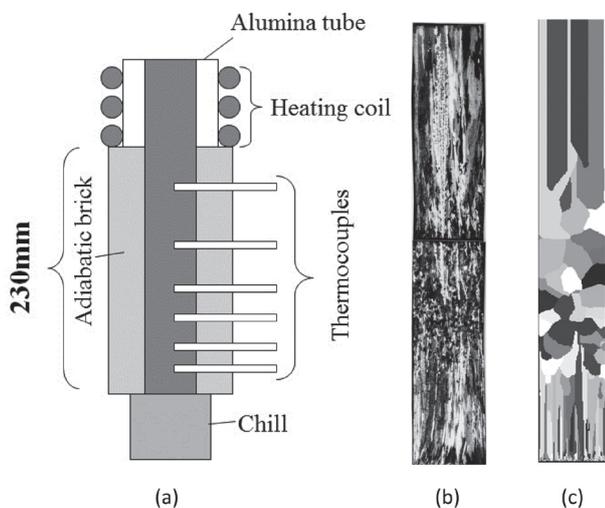


Fig.2 Unidirectional solidification of Al-3mass% Si alloy.
 (a) Experimental apparatus.
 (b) Experiment.
 (c) Simulation

Si組成を3mass% Siから変えると異なる核生成頻度を用いる必要がありました。マクロ組織形成シミュレーションでは異質核生成頻度を変えることにより、完全柱状晶から完全等軸晶までいかなる組織も作り出すことが出来ます。この結果からマクロ組織を予測するためには、核生成をどのように取り扱うかが極めて重要であることを実感しました。

一方向凝固に続いて0.1m×0.1mの正方形鋼製鋳型にAl-5mass% Si合金溶湯を普通鋳込みした試料のマクロ組織予測を試みました。核生成頻度は一方向凝固組織を再現するのに成功した値を用いました。ところが、実験の試料は等軸晶領域が広いのに対して、シミュレーションでは柱状晶が良く発達し、一致しませんでした。この原因を考察しました。過冷液相中に新たに結晶が生成する機構として次のものが考えられます⁹⁾。

- 1) 過冷融液中や鋳壁での異質核生成
- 2) 鋳壁近傍での結晶増殖 (Big Bang)
- 3) 溶湯流動下でのデンドライトの分断遊離
- 4) 溶湯表面での核生成 (Showering)

Fig.2の一方向凝固実験は1)の機構が主となるように工夫したのですが、マクロ組織を予測するためにはすべての結晶生成機構を考慮する必要があったのです。小型インゴットの普通鋳込み実験では1)の異質核生成に加えて2)の鋳壁近傍での結晶増殖 (Big Bang) が重要になると考え、さらに遊離した結晶が結晶の融点より過熱した液相領域にさらされると再溶解するモデルを考えてシミュレーションを行いました。Fig.3にその結果を示します。このモデルは鋳込み時の溶湯の過熱度を変えた時のマクロ組織変化を正確に再現することが出来ました¹⁰⁾。

以上の研究を通して実感したことは、事前に凝固マクロ組織を予測することはまだまだ困難であるということです。しかし、実際の組織をシミュレーションで再現することにより、凝固組織形成の機構を理解できるということが凝固シミュレーションの大きな利点だと思いました。

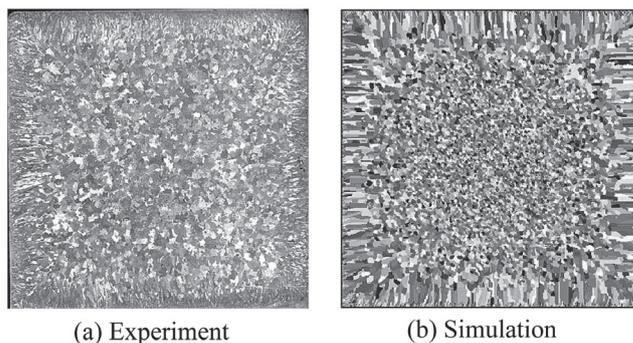


Fig.3 Observed and simulated structures of conventionally cast Al-5mass% Si alloy. (Super heat = 100K)

2.2 ミクロ組織形成モデル

ミクロレベルでの dendrite 成長形態をシミュレート出来る方法として1990年代半ば頃からフェーズフィールド法が急速に発達しました。そこで早速この方法を試してみると複雑な dendrite 形状が簡単に再現でき、感動したのを覚えています。現在フェーズフィールド法はさまざまな分野に用いられています。しかし dendrite 組織を対象とした場合、計算時間がかかることが欠点で、極めて小さい領域で、極めて短い時間での少数の dendrite の成長しか取り扱えず、マクロ凝固組織を扱うのは不可能でした。もちろん dendrite 組織形成のメカニズムを研究するには有効ですが、フェーズフィールド法を現実の凝固に応用するにはどうしたら良いかを考えました。

2009年～2012年にかけて、高温プロセス部会が主体となった「ミクロ・マクロ偏析制御」研究会に参加する機会を得ました。マクロ偏析の生成原因は、dendrite 間隙の合金元素や不純物元素が濃化した液相が、熱や溶質対流、凝固収縮流等により長範囲を移動することによります。液相流動を抑制する方法の一つとして、dendrite 形態を緻密にし、dendrite 間液相の流動抵抗を高める方法があります。dendrite を緻密にする方法として急冷や高過冷度凝固などが考えられますが、添加元素による dendrite 形態制御が最も実用的な方法と思われます。しかしながら、dendrite 形態におよぼす添加元素の影響をすべて実験により調査することは、時間とコストの両面で大きな負荷となるので、フェーズフィールド法により予測出来ないかと考えました。Fig.4にFe-0.35mass% C合金に0.40mass%の第三合金成分を加えたFe-0.35mass% C-0.40mass% - (Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) の7つの合金の計算結果¹¹⁾を示します。添加元素の違いによって dendrite の形態に差が現れています。

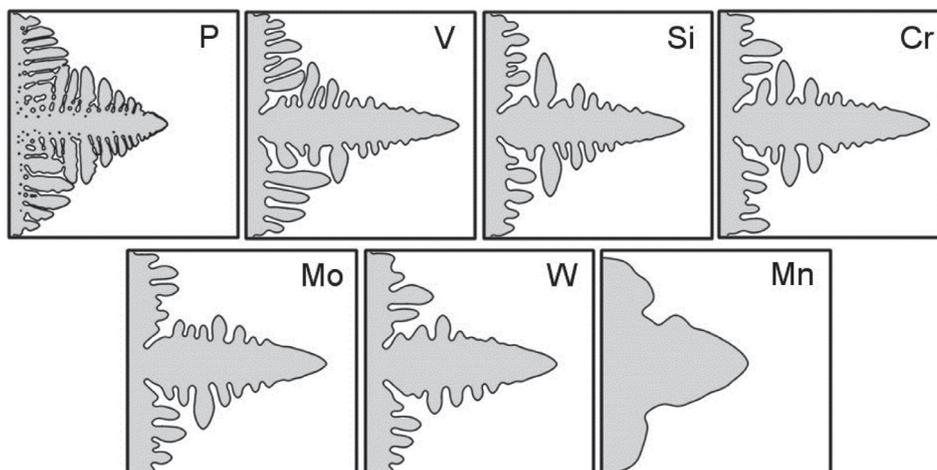


Fig.4 Simulated dendrite morphology of Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys by phase-field method.

3 組織形態の特性評価

3.1 組織形態の定量的評価

前節で dendrite 形態を複雑にする添加元素をフェーズフィールド法で予測する話をしましたが、この研究の過程で dendrite 形態の複雑さを定量的に評価するパラメータが必要になりました。従来 dendrite 形態を表現するために2次 dendrite アーム間隔 (Secondary Dendrite Arm Spacing, SDAS) が用いられています。しかし、SDASは柱状晶の成長方向に沿った断面でしか正確に測定することは出来ず、等軸晶の場合は測定が困難です。より便利なパラメータが望まれました。そこで新たにフラクタル次元と無次元周囲長の二つのパラメータを用いてみました。

フラクタル理論は1970年代半ばにマンデルブローによって自己相似性を有するパターンを記述するために提唱された理論です。フラクタル的性質を有する図形を評価するために定義されたのが「フラクタル次元」で、dendrite 形態もフラクタル特性を持つことが報告されています^{12,13)}

無次元周囲長の定義は次の通りです。まずシミュレーションにより得られた dendrite の周囲の長さを L_d 、dendrite 固相の面積を S_d とします。 S_d と同一の面積を有する円の円周を L_c とします。無次元周囲長 L は L_d/L_c で定義されます。フラクタル次元、無次元周囲長ともその値が大きいほど dendrite 形態が複雑であると言えます。

Fig.5に dendrite の成長過程における固相率 f_s の増加による各合金の dendrite のフラクタル次元 D_f の変化を示します。固相率の増加と共に各合金のフラクタル次元は増加し、dendrite 形態が複雑になっています。同一の固相率で比較するとP添加の合金のフラクタル次元が最も大きく、Mn添加の合金のフラクタル次元が最も小さい値を示し、

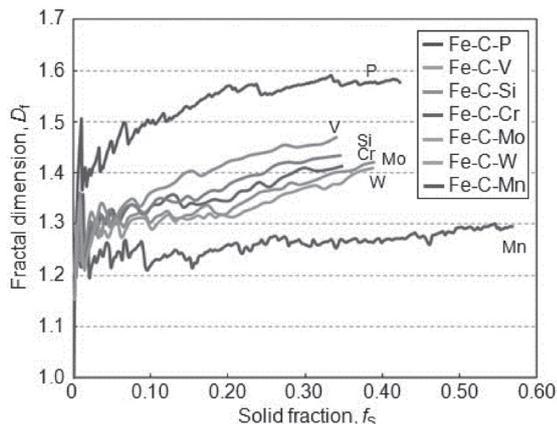


Fig.5 Change in the fractal dimensions of dendrites in Fe-C-X (X=Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) ternary alloys along with change in solid fraction.

定性的観察結果と一致しています。また、それ以外の合金では、フラクタル次元は近い値を示していますが、合金によって差があることが定量的に示されています。無次元周囲長でも同様の結果が示されています¹¹⁾。このように、フラクタル次元と無次元周囲長は dendrite 形態を評価するパラメータとして有効であることが分かりました。

3.2 透過率の見積もり

dendrite 間隙の液相の流動性を定量的に表すパラメータとして透過率が有ります。そこで、フェーズフィールドシミュレーションで得られた dendrite 形態から、透過率を評価することを試みました。Fig.6に示すように、固液共存層を複数の円管の流路を持つ多孔質媒体として取り扱くと、 dendrite 間隙を流れる流体の透過率は次のようになります¹⁴⁾。

$$K = \frac{g_L^2}{8n\pi\tau^3} \dots\dots\dots (1)$$

ここで g_L は液相率、 n は単位断面積当たりの流路数です。 τ は Fig.6 に示すように流路が直線ではないことを表す因子 (tortuosity factor) で、 L/L_e で表されます。ここで L_e は円管流路を直線にした時の長さです。この因子 (tortuosity factor) に無次元周囲長を適用すると、実測の透過率と合致することが分かりました^{11,15)}。

3.3 部分凝固時間の予測

無次元周囲長はシミュレーションによる1個の dendrite の場合、簡単に求めることができますが、3次元の dendrite 試料の2次元切断面から求めることは困難です。そこで、試料の2次元切断面に観察される初晶界面の総周囲長を L_d 、初晶総面積を S_d とし、 S_d と同面積の円を考え、その円周

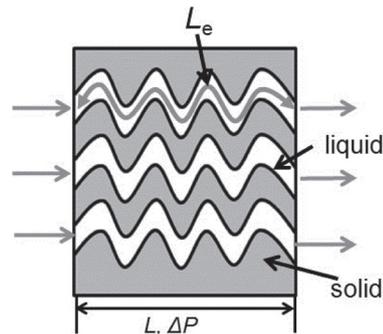


Fig.6 Schematic illustration of the Hagen-Poiseuille model for estimating the permeability of the mushy zone of a solidifying alloy.

を L_c とします。拡張した無次元周囲長 L を L_d/L_c として新たに定義しました¹⁶⁾。

Fig.7は底部を水冷した内径30mm、高さ200mmの断熱性鋳型内で一方向凝固させた Al-5mass% Si 試料内の dendrite 組織のフラクタル次元と無次元周囲長を、底部からの距離に沿って測定した結果¹⁶⁾を示しています。部分凝固時間は底部から上部の距離に沿って減少していきます。試料のマクロ組織は水冷した底部から柱状晶が発達し、柱状晶—等軸晶遷移を経て上部は等軸晶領域になっています。しかし、フラクタル次元および無次元周囲長は組織形態にかかわらず底部から上部への距離に沿って連続して減少しています。Fig.7下部に、図中の柱状晶領域中に○印で示されている位置での横断面、縦断面、斜断面の dendrite 組織が示されています。各断面で観察される dendrite 組織は異なっていますが、フラクタル次元および無次元周囲長の値はほぼ等しくなっています。この結果は従来 dendrite 2次アーム間隔から推定していた部分凝固時間が、2次アーム間隔測定が困難な条件でもフラクタル次元および無次元周囲長を測定することにより、簡便に求めることが出来る可能性を示しています。

4 おわりに

凝固プロセスを研究する上で、実験と凝固シミュレーションの組み合わせの有効性を実感してきました。私が最初に使用したコンピュータは大学に設置されていた大型コンピュータで、計算機センターに通いましたが、その後のコンピュータの進歩は著しく、現在のパソコンは当時のスパコンよりもはるかに高性能です。さらに最近では並列計算機や GPGPU 計算により極めて大規模な計算が可能になっています。このような恵まれた計算環境を利用して凝固シミュレーションが凝固プロセスの研究にますます寄与していくことを期待しております。

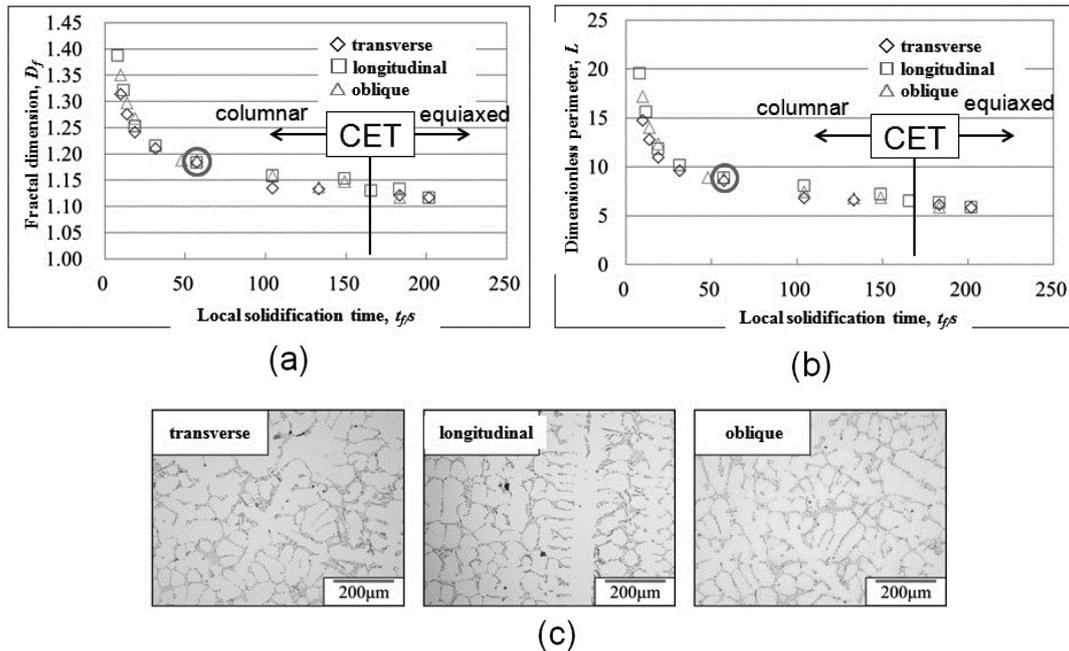


Fig.7 Changes in the fractal dimension (a) and dimensionless perimeter (b) of dendrites along with local solidification time in Al-5mass% Si alloy. Photographs (c) show the dendrite structures of longitudinal, transverse and oblique sections at the local solidification time of about 55s (positions enclosed by a circle in upper figures (a) and (b)).

参考文献

- 1) S.G.R.Brown and J.A.Spittle : Inst.Met., (1989), 362.
- 2) J.A.Spittle and S.G.R.Brown : Acta Metall., 37 (1989), 1803.
- 3) J.A.Spittle and S.G.R.Brown : Journal of Materials Science, 23 (1989), 1777.
- 4) M.Rappaz and Ch.-A.Gandin : Acta Metall., 41 (1993), 345.
- 5) Ch.-A.Gandin and M.Rappaz : Acta Metall., 42 (1994), 2233.
- 6) W.Kurz, B.Giovanola and R.Trivedi : Acta Metall., 34, (1986), 823.
- 7) Ph.Thevoz, J.L.Desbiolles and M.Rappaz : Metall. Trans., 20A (1989), 311.
- 8) 西口範孝, 大笹憲一 : 鑄造工学, 77 (2005), 3.
- 9) B.Chalmers : Principles of Solidification, John Wiley & Sons, Inc., (1964)
- 10) T.Akagiri, Y.Natsume, K. Ohsasa and K.Matsuura : ISIJ Int., 48 (2008), 355.
- 11) 菅原諒介, 伊藤利久, 梶千修, 大笹憲一 : 鉄と鋼, 99 (2013), 126.
- 12) L.Sun, Q.Wu, J.Zhang and Z.Hu : J.Mater.Sci.Tec., 10 (1994), 229.
- 13) A.Yang, Y .Xiong and L.Liu : Sci.Tec.Adv.Mater., 2 (2001), 101.
- 14) T.S.Piwonka and M.C.Flemings : Trans AIME, 236 (1966), 1157.
- 15) K.Ohsasa, T.Katsumi, R.Sugawara and Y.Natsume : IOP Conf.Series : Materials Science and Engineering, 33 (2012), 012108.
- 16) K.Ohsasa, Y.Natsume, T.Sekiya and T.Hatayama : IOP Conf.Ser. : Mater.Sci.Eng., 84 (2015), 012033.

(2016年5月9日受付)