



私の論文

／ 今振り返ってみて、行間にこめた思い、エピソード

マクロ偏析予測と透過率評価

Evaluation of Permeability to Predict Macrosegregation

栗 千修

Yukinobu Natsume

秋田大学 大学院理工学研究科
物質科学専攻

准教授

1 はじめに

本稿では第77回俵論文賞を受賞した拙著「3次元数値流体解析による柱状デンドライト組織の透過率評価¹⁾」に関して論文には書き切れなかった研究の背景やエピソードなどを紹介する。なお、本論文に関する研究はISIJ International Vol.53 (2013) No.5に掲載された拙著「Quantitative Model to Determine Permeability for Columnar Dendritic Structures²⁾」との2編構成となっており2編分の内容を本論文として、「マクロ偏析予測と透過率」と題し、研究背景から今後の課題までをエピソードを交えて述べさせていただきたいと思う。

2 研究背景

本論文の背景には、鉄鋼材料の casting プロセスの積年の課題であるマクロ偏析低減に向けた予測シミュレーションモデルの開発がある。鉄鋼材料はほぼ全て連続 casting 法が造塊法によって製造されるが、その casting 過程では必ず偏析が生じる。铸件・铸塊の割れにつながるマクロ偏析は限りなくゼロにしたいとの思いが現場の希望であろう。1970～1980年代、製造現場では連続 casting 铸件に生成する中心偏析や大型鋼塊に生成する逆V偏析などのマクロ偏析に悩まされていたと思われる。その証拠としてこの時期、非常に多くの実験研究や実铸塊の実態調査の報告があり、和文だけでも論文数は非常に多い³⁻¹³⁾。その成果として固液共存領域の流動がマクロ偏析の生成に大きく関与していることが突き止められ、現在ではマクロ偏析起因の casting 割れによる不良は低減している。しかし、完全にマクロ偏析の生成メカニズムが解明され、制御技

術が確立したわけでは無く、新鋼種開発などでは現在でもまだマクロ偏析は解決課題の一つとなっている。

計算機の日覚ましい発展もあり1990年代頃からマクロ偏析生成メカニズムの解明に数値シミュレーションが利用されるようになってきた¹⁴⁻²³⁾。マクロ偏析シミュレーションは、温度場(凝固熱伝導方程式)、濃度場(拡散方程式)、流れ場(Navier-Stokesの式、連続の式)の支配方程式の連成計算により実行されるが、モデルの最大の特徴は、凝固時の固液共存領域にDarcy流れを仮定して、Navier-Stokesの式にDarcy項を外力項として加え液相の伴う全ての領域の流れを考慮しているところである。初期のシミュレーションは非常に粗い要素サイズでの計算であったため、マクロ偏析の分布がわかる程度であったが、近年では実铸塊で観察されるような偏析帯の生成を見事に再現できるようになってきた。しかしながら、マクロ偏析を定量的に予測できるモデルは今でも確立していない。多くのモデルで考慮されるDarcy流れは多孔質媒体中の流体の流速を表す関係式であり、流体がどの程度浸透するか、あるいはどの程度流れやすいかを決めるパラメータが含まれている。これが透過率(Permeability)と呼ばれるもので、本論文の題目にも現れる重要パラメータである。Darcy流れによる流速は、多孔質媒体の空隙率、圧力損失と比例関係にありその比例定数に相当するものが透過率である。したがって多孔質媒体の状態(空隙率)が同じであってもマクロ偏析シミュレーションの結果は透過率の値に左右される。ここでいう多孔質媒体とは凝固組織いわゆるデンドライトのことであり、数mm以上にもなるマクロスケールで生成する偏析が数十～数百 μm のミクロスケールの組織に支配されているということになる。これは、厳密にマクロ偏析を

* [今回の対象論文]

栗千修, 高橋大喜, 河嶋佳純, 谷川英司, 大笹憲一: 「3次元数値流体解析による柱状デンドライト組織の透過率評価」, 鉄と鋼, Vol.99(2013), No.2, pp.117-125 (第77回俵論文賞受賞論文)

予測するためにはミクロスケールでモデル化しなければならないことを意味するが、計算コストなどの点であり現実的なモデルになるとは言えない。ゆえにDarcy流れによる近似を精度良く行える適切な透過率の評価が重要となる。すなわちマクロ偏析の予測精度の鍵を握る因子の一つが透過率ということになる。

金属材料に対する透過率測定の実験研究は1960～1980年代に盛んに行われており、透過率と液相率の関係が系統的に調査されている²⁴⁻³⁴⁾。また、柱状デンドライト組織に対しては流れの方向によって透過率が異なること(透過率の異方性)なども明らかにされた。多くのシミュレーションでは、透過率 K と液相率 g_L の関係として(1)式のKozeny-Carmanの式が用いられる³⁵⁾。これは実験的に様々な多孔質媒体に対してこの関係が良く当てはまるからであろう。ここで d はデンドライトアーム間隔であり、一応、凝固組織の情報が含まれている。一応と述べた理由は、研究論文によってこれが1次デンドライトアームであったり、2次デンドライトアームであったりするからである。言い換えれば透過率を大ざっぱな見積もりでシミュレーションしている例が少なくないということである。

$$K = \frac{d^2}{180} \frac{g_L^3}{(1 - g_L)^2} \quad (1)$$

定性的なマクロ偏析の再現が目的であればそれでも良いが、実際のものと類似したマクロ偏析分布は再現できても予測はできない。そこで、マクロ偏析予測を可能にする上で重要なパラメータである透過率をより正確なモデルとして評価できないかというのが、本論文のモチベーションであった。

3 本論文の概要

前章で述べた研究背景から透過率の重要性はご理解いただけたと思う。実験による透過率の測定は1980年中頃までの論文²⁴⁻³⁴⁾に多く見られるが、近年ではあまり見られなくなっている。これは実験の難しさもあると思われ、より簡便な流体解析を用いた透過率の評価法を提案する論文³⁶⁻³⁹⁾が近年見られるようになってきた。本論文の目的も流体解析を用いた透過率評価法の提案¹⁾とその方法で得られた結果に基づく透過率の定量的な評価モデルの提案²⁾である。まず前者の透過率評価法であるが、詳細は原著論文¹⁾を参照していただくこととして、その骨格だけを説明する。透過率を求める基本的な手順は、デンドライト組織を境界条件として一方向に流れる液相のデンドライト間流れを流体解析によって計算し、定常状態での圧力損失からDarcy則にしたがって透過率を算出する。したがって、ポイントとなるところはデンド

ライト組織の境界条件である。先行研究では、デンドライト組織を模した対称的な幾何学模様(丸や菱形など)を2次元的に並べて2次元の境界条件を作成したもの^{36,37)}や、最近ではX線CTによる実際の凝固組織のスライス画像からデンドライト部分を抽出して3次元再構築して境界条件を作成したもの³⁸⁾、デカンテーションによって凝固途中の溶湯を捨て組織を取り出し3次元スキャナーで境界条件を作成したもの³⁹⁾などが報告されている。2次元の境界条件については、流体の流れ方に制約ができるため妥当な透過率を算出することが難しいと思われるが、1990年代前半に行われた研究としては先駆的で価値あるものであると言える。実際の組織から3次元の境界条件を作成する方法については、実際の透過率を算出する方法としては有効であるが、狙いの液相率(あるいは空隙率)となる組織を実験で作り上げることは難しく、液相率の異なる系統的な透過率を算出するためには相当数の実験を行う必要があると思われる。結果として境界条件そのものもコンピュータ上で作成する方法が良いという結論となり、セルオートマトン法によってシミュレーションした3次元等軸デンドライトを境界条件として透過率を算出した研究⁴⁰⁾も報告されている。本論文では、3次元デンドライト組織の作成に2次元フェーズフィールド法⁴¹⁾と3D-CADを用いた(Fig.1)。現在では3次元フェーズフィールド法によって任意の組織(境界条件)を作り上げることが可能であるが、当時は3次元計算をすぐに実施できる手段が無く、共著者の河嶋さん、谷川さんに無理を言って3D-CADで作成してもらった。2次元平面のデンドライト形状が非常にリアルな3次元形状に作り込まれており、これは今でもかなりのお気に入りである。Fig.1を見ていただければわかると思うが本論文では柱状デンドライト組織を作成した。これは前章で

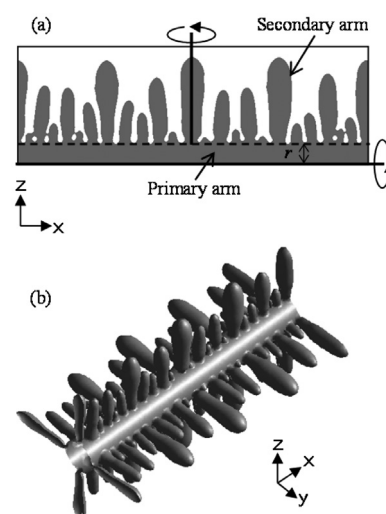


Fig.1 Dendritic morphology used in the present work¹⁾.
(a) 2D dendrite calculated by phase-field method.
(b) 3D dendrite made by CAD.

述べた透過率の異方性を評価しなかったからである。透過率は流れやすさを示すパラメータであるから1次デンドライトアームに対して平行方向の流れと垂直方向の流れではその流路も流れやすさも異なる。計算結果では平行方向の流れの透過率が2~3倍程度大きくなっていた。これらの計算結果をMurakamiら^{28,29)}、Liuら³⁰⁾の実験結果と比較したものがFig.2であるが、非常に良い相関関係を示しており、この図を作成したとき本論文での透過率評価法の正当性を確認できたことに加え、精度の高い実験が30年も前になされていたことに感心した。

ここからは透過率の定量的な評価モデルの構築についてである。結果として本論文で構築したモデルはModified Kozeny-Carman (MKC) モデルと呼ぶこととしたが、その名の通りKozeny-Carmanの式がベースとなっている。もちろん最初からKozeny-Carmanの式がベースになるとは考えていなかった。先に述べたように計算結果と実験結果が非常に良い相関を示したことからKozeny-Carmanの式が多くの多孔質媒体に対して良く当てはまることから、とりあえず(1)式の d に適切な値を入れてグラフ上で比較してみることにした。なんと計算値と実験値が(1)式の曲線上にきれいに並んでおり、この図を見たとき少し鳥肌が立った。これはいける！このときKozeny-Carmanの式の凄さとすばらしさを

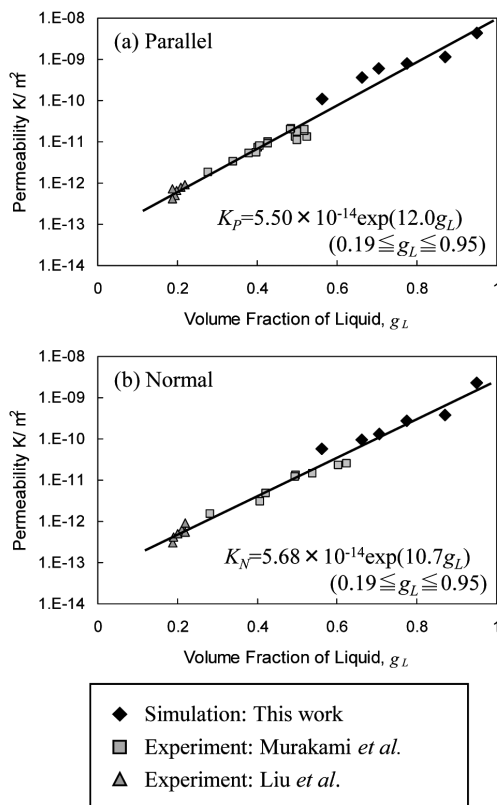


Fig.2 Relation between permeability and volume fraction of liquid for our simulations and the experiments¹⁾.

感じた。もちろんKozeny-Carmanの関係以外にもいくつかの関係式と計算値を比較してみたが、それほど良く一致するものはなかった (Fig.3)。そこからはKozeny-Carmanの式をベースとすることに決め、Kozeny定数と呼ばれる形状因子を組織の異方性を説明できるように理論立てていくことにやや苦戦したが、透過率の異方性を定量的に評価できる一つのモデルとしてMKCモデルを完成させた。Fig.4が本論文の流体解析で算出した透過率とMKCモデルの透過率の比較であるが、今見ても非常に良く一致していると思う。最終的にMKCモデルは1次デンドライトアーム間隔 d_1 、2次デンドライトアーム間隔 d_2 、液相率 g_L の3つの変数のみで(2)式のように整理した。

$$K_{P-MKC} = 0.0194 \left[\frac{d_2}{1 + (d_2/d_1)} \right]^2 \frac{g_L^3}{(1 - g_L)^2} \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$K_{N-MKC} = 0.0097 \left[\frac{d_2}{1 + (d_2/d_1) + 2(d_2/d_1)^2} \right]^2 \frac{g_L^3}{(1 - g_L)^2}$$

ここで、 K_{P-MKC} 、 K_{N-MKC} はそれぞれ平行方向の流れ、垂直方向の流れに対する透過率である。Fig.5が d_1 、 d_2 、 g_L がわかっている過去の実測データと(2)式による計算値の比較であるが、

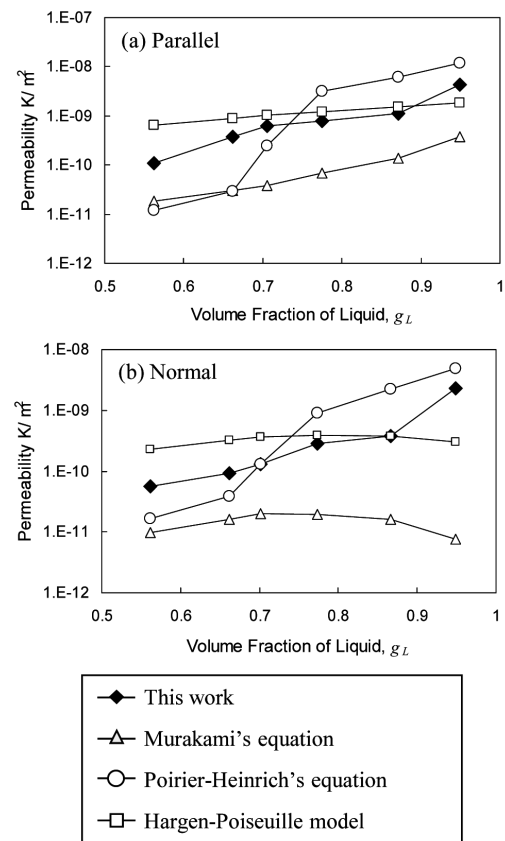


Fig.3 Relation between permeability and volume fraction of liquid for our simulations and three equations¹⁾. (a) Flow parallel to the primary dendrites. (b) Flow normal to the primary dendrites.

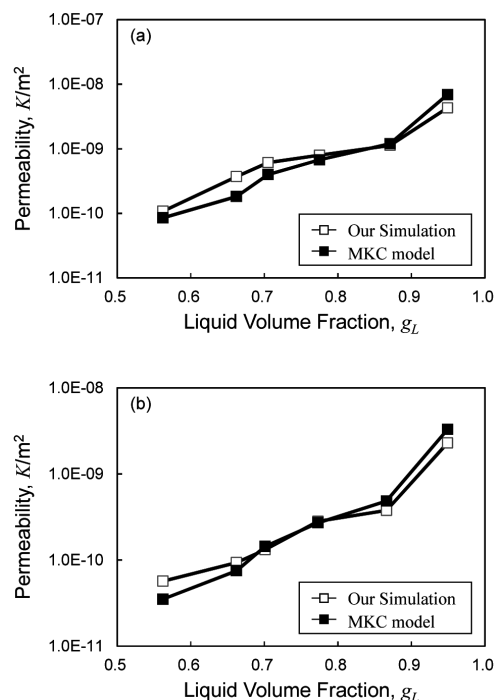


Fig.4 Relationship between the liquid volume fractions and the permeability in our previous simulations and the present MKC model²⁾. (a) For a flow parallel to the primary arms. (b) For a flow normal to the primary arms.

MKCモデルによる透過率が多くの実測データと相関関係を示していることがわかる。

4 今後の課題

研究背景でも述べたがマクロ偏析予測を可能とするモデル構築が、本論文の研究の根底にある。その意味ではMKCモデルによって、マクロ偏析予測に一步近づいた議論が今後展開できるのかもしれない。(2) 式に示すMKCモデルは、 d_1 , d_2 , g_L の3つの変数だけで構成されているためマクロ偏析シミュレーションモデルにも組み込みやすくなっている。 d_1 , d_2 は温度場計算の結果から冷却速度や温度勾配との関係式を用いて容易に求められ、液相率は平衡状態図から算出できる。すなわち、シミュレーションの中でリアルタイムに各計算要素の透過率が更新され、より適切な組織の状態を反映したシミュレーションができるようになる。また、本論文では、凝固組織のより詳細な情報をマクロ偏析シミュレーションに反映させるために透過率の異方性も考慮している。もちろん異方性を考慮した透過率の関係式は、MKCモデル以外にもいくつか提案されている^{16,20,42)}。しかしながら透過率の異方性を考慮する場合には、1次 dendrait アームの成長方向の定義が必要となってくる。通常、マクロ偏析シミュレーションでは凝固組織形成を同時に計算することではなく、dendrait の成長方向は厳密にはわからない。フェーズフィールド法な

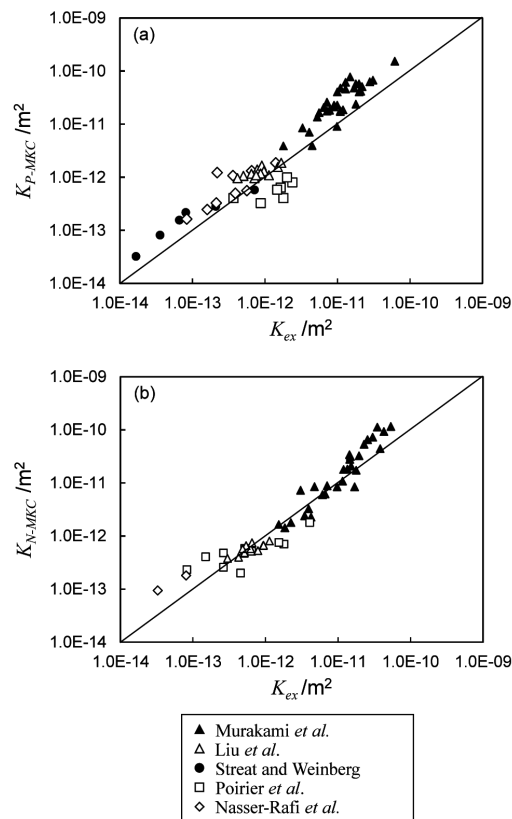


Fig.5 Comparison of the permeability obtained from experiments and the MKC model²⁾. (a) For a flow parallel to the primary arms. (b) For a flow normal to the primary arms.

どでの dendrait 成長シミュレーションを併用できればこのような問題は発生しないが、dendrait 成長シミュレーションとの併用は膨大な計算量となるため現時点では不可能であり、将来もかなり厳しいと言わざるを得ない。したがって、何らかの仮定をおいて近似的に成長方向を定義する必要がある。最も簡便な方法は座標軸に成長方向を合わせてしまうことである。本稿では誌面の都合上詳細は述べられないが、座標軸を成長方向として単純に異方性を定義した場合でもマクロ偏析シミュレーションの結果はかなり変わってくる。

今後は透過率の異方性だけでなく、等軸晶組織の場合はどうなのかなどミクロスケールの情報をどのようにマクロ偏析シミュレーションモデルに適切に組み込んでいくかが課題となってくるだろう。根本的な発想の転換も必要になってくるかもしれない。

5 おわりに

マクロ偏析予測シミュレーションの高精度化に向けて適切な透過率を評価する目的で始めた本論文の研究背景と概要を中心にエピソードを交えて紹介した。今振り返ってみると当初モデル構築までは想定していなかったが、やや力業である

3D-CADによるデンドライト形態作成から始まり、透過率の算出、Kozeny-Carmanの式との比較と順を追ってモデル構築まで進み、比較的順調に結果が得られたと思う。これで透過率に関する課題が全て解決したわけではないが、マクロ偏析の予測精度は徐々に高まっていくものと期待している。今後は、MKCモデルを導入したマクロ偏析シミュレーションによりどの程度予測精度が向上したかを検証していくことになる。最後に、本研究は著者の前職場（神戸製鋼所）で行った研究であり、誌面を拝借して共著者とすばらしい研究環境を整えて下さった関係者の皆様に深く感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 榑千修, 高橋大喜, 河嶋佳純, 谷川英司, 大笹憲一: 鉄と鋼, 99 (2013), 117.
- 2) Y.Natsume, D.Takahashi, K.Kawashima, E.Tanigawa and K.Ohsasa : ISIJ Int., 53 (2013), 838.
- 3) 田代晃一, 轟木透, 木村重夫: 鉄と鋼, 57 (1971), 1479.
- 4) 鈴木是明, 宮本剛汎: 鉄と鋼, 63 (1977), 53.
- 5) 鈴木是明, 宮本剛汎: 鉄と鋼, 65 (1979), 1571.
- 6) 森信幸, 大城桂作, 松田公扶: 日本金属学会誌, 43 (1979), 851.
- 7) 森信幸, 大城桂作, 松田公扶: 日本金属学会誌, 43 (1979), 858.
- 8) 拝田治, 岡野忍, 江見俊彦, 河西悟郎: 鉄と鋼, 67 (1981), 954.
- 9) 森信幸, 笹栗信也, 大城桂作, 松田公扶: 日本金属学会誌, 50 (1986), 480.
- 10) 森信幸, 大城桂作: 日本金属学会誌, 50 (1986), 486.
- 11) 山田人久, 桜井隆, 竹之内朋夫, 岩波義幸: 鉄と鋼, 73 (1987), 1706.
- 12) 山田人久, 桜井隆, 竹之内朋夫: 鉄と鋼, 75 (1989), 97.
- 13) 山田人久, 桜井隆, 竹之内朋夫: 鉄と鋼, 75 (1989), 105.
- 14) J.C.Heinrich, S.Felicelli, P.Nandapurkar and E.R.Poirier : Metall. Trans. B, 20B (1989), 883.
- 15) S.D.Felicelli, J.C.Heinrich and D.R.Poirier : Metall. Trans. B, 22B (1991), 847.
- 16) D.R.Poirier and J.C.Heinrich : Mater.Characterization, 32 (1994), 287.
- 17) H.C.Schneider, J.P.Gu, C.Beckermann, W.J.Boettinger and U.R.Kattner : Metall. Mater. Trans. A, 28A (1997), 1517.
- 18) S.D.Felicelli, D.R.Poirier and J.C.Heinrich : Metall. Mater. Trans. B, 29B (1998), 847.
- 19) C.Beckermann : International Materials Reviews, 47 (2002), 243.
- 20) J.C.Heinrich and D.R.Poirier : C.R.Mecanique, 332 (2004), 429.
- 21) J.Li, M.Wu, J.Hao and A.Ludwig : Computational Materials Science, 55 (2012), 407.
- 22) 澤田朋樹, 及川勝成, 安斎浩一: 鉄と鋼, 99 (2013), 135.
- 23) A.Saad, Ch.-A.Gandin and M.Bellet : Computational Materials Science, 99 (2015), 221.
- 24) T.S.Piwonka and M.C.Flemings : Trans.Metall.Soc. AIME, 236 (1966), 1157.
- 25) D.Apelian, M.C.Flemings and R.Mehrabian : Metall. Trans., 5 (1974), 2533.
- 26) N.Streat and F.Weinberg : Metall. Trans.B, 7B (1976), 417.
- 27) K.Murakami and T.Okamoto : Acta Metall., 32 (1984), 1741.
- 28) K.Murakami, A.Shiraishi and T.Okamoto : Acta Metall., 31 (1983), 1417.
- 29) K.Murakami, A.Shiraishi and T.Okamoto : Acta Metall., 32 (1984), 1423.
- 30) C.Y.Liu, K.Murakami and T.Okamoto : Mater. Sci. Tech., 5 (1989), 1148.
- 31) R.Nasser-Rafi, R.Deshmukh and D.R.Poirier : Metall. Trans., 16A (1985), 2263.
- 32) D.R.Poirier : Metall. Trans., 18B (1987), 245.
- 33) D.R.Poirier and P.Ocansey : Mater.Sci.Eng., A171 (1993), 231.
- 34) S.Ganesan, C.L.Chan and D.R.Poirier : Mater. Sci. Eng., A151 (1992), 92.
- 35) J.A.Dantzig and M.Rappaz : Solidification, EPFL Press, (2009), 131.
- 36) M.S.Bhat, D.R.Poirier and J.C.Heinrich : Metall. Trans., 26B (1995), 1049.
- 37) J.C.Heinrich, D.R.Poirier and D.Nagelhout : Comput. Methods Appl. Mech. Eng., 133 (1996), 79.
- 38) D.Fuloria, P.D.Lee and D.Bernard : Mater. Sci. Eng., A494 (2008), 3.
- 39) J.Madison, J.Spewart, D.Rowenhorst, L.K.Aagesen, K.Thornton and T.M.Pollock : Acta Mater., 58 (2010), 2864.
- 40) S.G.R.Brown, J.A.Spittle, D.J.Jarvis and R.Walden-Bevan : Acta Mater., 50 (2002), 1559.
- 41) Y.Natsume : R & D Kobe Steel Engineering Reports, 58 (2008), 35.
- 42) R.G.Santos and M.L.N.M.Melo : Mater. Sci. Eng., A391 (2005), 151.

(2017年2月20日受付)