



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

結晶粒成長シミュレーションモデルの提案と 実材料への適用

Proposal of Grain Growth Simulation Model and
Its Application to Actual Materials

玉木輝幸 新日鐵住金(株) 技術開発本部
鉄鋼研究所 電鋼板研究部長
Teruyuki Tamaki

1 はじめに

平成28年俵論文賞を受賞した拙著「結晶粒成長シミュレーションのための二次元局所曲率マルチバーテックスモデルの提案」¹⁾に関して、論文には書き切れなかった研究のきっかけや行間を埋める解説、裏話、今後の発展性などを紹介させていただく機会を頂戴した。なお、本論文に関する研究は、続報の「Simulation on Change in Microstructure and Texture during Normal Grain Growth of Steel Sheet by Two-dimensional Local Curvature Multi-vertex Model」(ISIJ Int., 55 (2015), No.3, 655-661)²⁾と「二次元局所曲率マルチバーテックスモデルに基づいたピン止め粒子存在下での結晶粒成長モデルの提案」(鉄と鋼, 101 (2015) No.4, 260-268)³⁾の3編構成であり、3編分の内容について述べさせていただきたい。

2 本研究との出会い

最近では、フェーズフィールド法を用いた結晶粒成長シミュレーション⁴⁾が容易にできるようになりつつありますが、私がこの研究をはじめた2005年頃は、私自身のフェーズフィールド法への理解が不十分であったこともあり、結晶粒成長をシミュレーションすることは容易ではありませんでした。

当時私は、現所属とは異なる部署に在籍して、電磁鋼板の電磁場数値解析⁵⁾とそれに必要な磁気特性データ取得のた

めの計測技術開発⁶⁾を行っており、電磁鋼板の研究開発に携わっていたものの、材料そのものの研究開発は担当していませんでした。きっかけは、電磁鋼板の材料研究者から、「結晶粒成長のシミュレーションをできないか」との相談を受けたことでした。このとき、結晶粒成長についての知識はほとんどありませんでしたので、結晶粒成長シミュレーションがどういうものであるかを、まず相談者から簡単に説明してもらいました。このときの要点は、「結晶格子はエネルギーが低く安定しているが、粒界は結晶格子に比べてエネルギーが高く不安定である。したがって、自然界の法則に則って、粒界は粒界自身が消滅するように移動する」というものでした。私が提案した結晶粒成長モデルは、この自然界の法則を具体的にただけである、と言えます。この点については、後ほど解説したいと思います。

当社における結晶粒成長のシミュレーションの目的の一つは、方向性電磁鋼板の二次再結晶のメカニズム解明であり、また、それによる材料開発の加速でありました。当社は、方向性電磁鋼板の二次再結晶におけるGoss方位の選択成長の機構については、統計論的手法を用いて説明できる対応方位理論を提唱していますが⁷⁾、明らかでない点がまだ多くあります。そこで、異常粒成長を支配していると考えられている粒界特性とピン止めに影響を与える集合組織のモフォロジーを、個別の結晶粒ごとに検討できる結晶粒成長モデルの提案を試みました。このとき、粒界移動の本質を、物理法則に基づいて、できるだけ忠実に表現することを最優先としました。

* [今回の対象論文]

玉木輝幸, 村上健一, 潮田浩作: 「結晶粒成長シミュレーションのための二次元局所曲率マルチバーテックスモデルの提案」, 鉄と鋼, Vol.101 (2015), No.3, pp.211-220 (第79回俵論文賞受賞)

3 モデルの着想

粒界の移動は、原理原則から以下の3つの基本原理に従うと考えられます。

- ①粒界は、粒界エネルギーを小さくするために、粒界の局所的な曲率中心に向かって移動する。
- ②三重点は、粒界エネルギーが小さくなるように移動する。
- ③粒界がインヒビターと交差することで、粒界エネルギーが減少するので、粒界がピン止めされる。

この基本原理をできるだけ忠実にモデル化するために、二次元局所曲率マルチバーテックスモデルでは、Fig.1に示すように粒界上にいくつかの仮想の点を離散的に配置して、その仮想点に対して上記①を適用しました。曲率は、対象の仮想点とその両隣の2つの点の3つの点で決定することができます。この方法によって、連続的な線を離散的な点に置き換えるという近似があるものの、線で表わされる粒界の移動を点の移動に変換することができ、モデル化が可能になりました。離散化による誤差については、元の論文¹⁾をご参照ください。また、三重点に対しては上記②をそのまま適用しました。具体的には、粒界つまり仮想点の移動は式(1)で、三重点の移動は式(2)で記述できます。

$$\vec{v}_{gb,i} = M_{gb,i} \vec{F}_{gb,i}, \quad \vec{F}_{gb,i} = \gamma_i \vec{\kappa}_{gb,i}, \quad \vec{\kappa}_{gb,i} = -\frac{1}{R_i} \frac{\vec{R}_i}{\|\vec{R}_i\|} \dots\dots\dots (1)$$

$$\vec{v}_{tp,i} = M_{tp,i} \vec{F}_{tp,i}, \quad \vec{F}_{tp,i} = \sum_{j=1}^3 \gamma_{ij} \frac{\vec{q}_{ij}}{\|\vec{q}_{ij}\|} \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 $\vec{v}_{gb,i}$ は粒界上の仮想点 $p_{gb,i}$ の移動速度、 $M_{gb,i}$ は仮想点 $p_{gb,i}$ が属する粒界の易動度、 $\vec{F}_{gb,i}$ は粒界に作用する単位長さ当たりの駆動力で、その方向は仮想点 $p_{gb,i}$ から曲率中心へ向かう方向、 γ_i は粒界の単位長さ当たりの粒界エネルギー、 $\vec{\kappa}_{gb,i}$ は仮想点 $p_{gb,i}$ での粒界の曲率を大きさとし、仮想点 $p_{gb,i}$ からその曲率の中心へ向かう方向を有する曲率ベクトルで、 \vec{R}_i は仮想点 $p_{gb,i}$ での粒界の曲率半径の大きさとし、仮想点 $p_{gb,i}$ の曲率半径の中心から仮想点 $p_{gb,i}$ へ向かう方向を有する曲率半径ベクトルである。 $\vec{v}_{tp,i}$ は三重点 $p_{tp,i}$ の移動速度、 $M_{tp,i}$ は三重点 $p_{tp,i}$ の易動度、 $\vec{F}_{tp,i}$ は三重点 $p_{tp,i}$ に作用する駆動力、 γ_{ij} は三重点 $p_{tp,i}$ と隣接する点 p_j が属する粒界の単位長さ当たりの粒界エネルギー、 \vec{q}_{ij} は三重点 $p_{tp,i}$ から隣接する点 p_j へのベクトルである。このとき、式(1)、(2)の駆動力 $\vec{F}_{gb,i}$ 、 $\vec{F}_{tp,i}$ は、粒界エネルギーの勾配 (grad) から導出できることから、これらの表現は原理原則に基づいていると言えます。このとき、仮想点つまり粒界の駆動力 $\vec{F}_{gb,i}$ は単位長さ当たりの駆動力で、その単位は [N/m] であり、三重点の駆動力 $\vec{F}_{tp,i}$ は駆動力そのもので、その単位は [N] であることに気をつけなければなりません。粒界の駆動力 $\vec{F}_{gb,i}$ は粒界エネルギーの勾配を粒界の長さで除する必要があります。したがって、それぞれの易動度 $M_{gb,i}$ 、 $M_{tp,i}$ の単位も異なります。粒界の易動度 $M_{tp,i}$ の単位は [(m/s) / (N/m)] となり、三重点の易動度 $M_{tp,i}$ の単位は [(m/s) / N] となります。

モデル構築をはじめた当初、私は実はこの点を理解できておらず、単位が正しくない (と思っていた) 方程式を用いてシミュレーションをしていることが気になっておりました。また、当時の上司からこの点を質問されたときにも明確に答えることができませんでした。しかし、シミュレーションによる結晶粒成長の動画は、如何にも粒成長が正しく起こっているように見えたことから、この点は先送りにしていました。なぜ理解できたかはよく覚えていませんが、この点を正しく理解できたのは投稿論文を執筆しはじめたところで、正に10年越しでした。そのころには、上司も私も異動しておりましたが、お会いした機会に説明させてもらい、ようやく宿題を終えられたということで、心が晴れたのを覚えています。このときあらためて、自分の研究をまとめることの大切さを感じました。自分の中での、このままではこの論文を公表できないと思いが、この理解に至らしめたのだと思っています。

今回、3編分の論文について述べさせていただきますが、実は最も早い時期に内容が完成していたのは、目的の一つが方向性電磁鋼板の二次再結晶のメカニズム解明であったこともあり、3編目のピン止めに関するものでした。2編目については、モデルの構築、応用に加えて実験を進めなければならなかったために、3編目より時間を要しましたが、1編目より先でした。このように、物理原理に基づいたモデルを実際の物づくりに役立てることを優先した結果、1編目の完成が後回しになってしまいました。しかし、あらためてモデルを考察し直したことで、理解をより深めることができ、離散化の

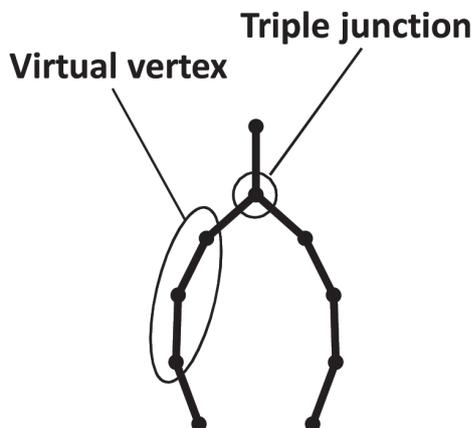


Fig.1 Two-dimensional local curvature multi-vertex model.

誤差を詳細に検討することができました。

4 集合組織変化に及ぼす粒界エネルギーと粒界易動度の影響について

粒界エネルギーと粒界易動度の影響についてシミュレーションで検討した結果、粒界エネルギーは結晶粒成長による結晶粒方位差分布の変化に大きな影響を与え、粒界易動度はほとんど影響を与えないことが明らかになりました²⁾。

粒界 (仮想点) の移動は、式 (1) に記述されているように、粒界易動度、粒界エネルギーおよび曲率の積によって決定されるので、粒界 (仮想点) の移動に及ぼす粒界易動度と粒界エネルギーの影響は同等であると言えます。しかしながら、三重点の移動に及ぼす粒界易動度と粒界エネルギーの影響は、式 (2) に記述されているように異なると言えます。Fig.2 に示すように、粒界エネルギーおよび粒界易動度が大きい場合には粒界は移動し易いので、減り易いこととなります。反対に、粒界エネルギーおよび粒界易動度が小さい場合には粒界は移動し難いので、減り難いこととなります。一方、三重点の場合、易動度には関係なく、低エネルギー粒界は増えて、高エネルギー粒界は減ることとなります (Fig.2, Fig.3)。

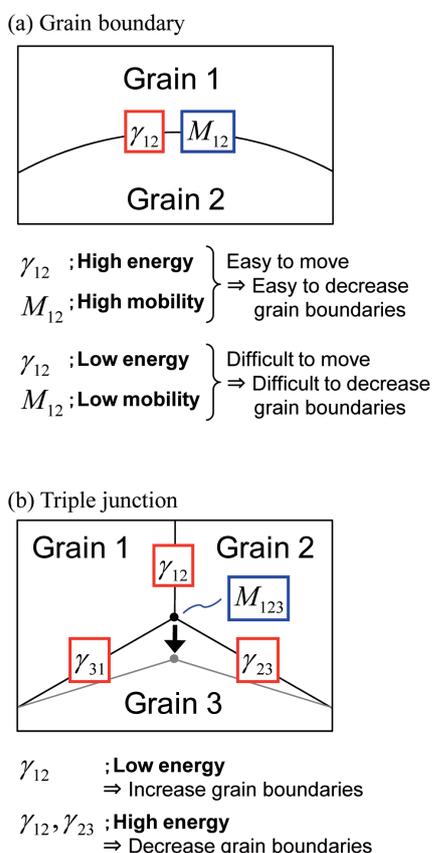


Fig.2 Migration of (a) grain boundary and (b) triple junction.

元々、粒界は粒界エネルギーを減らすように移動する、と考えています。つまり、粒界エネルギーを減らすことが粒界の駆動力となっています。一方、粒界易動度は、粒界エネルギーで生じた駆動力による粒界の移動のし易さ、し難さを表すものです。したがって、易動度は、中間状態に至る時間に影響を与えるものの、最終状態を決めるものではない、と考えられます。但し、中間状態の組み合わせによって最終状態が変化することはあり得ます。粒界エネルギーが同じ場合、易動度の小さい粒界が易動度の大きい粒界と比べて相対的に増えるという事はあり得ない、と考えられます。

5 おわりに

モデルによる数値シミュレーションでは、モデルに組み込んだ原理に基づいた結果が得られるのであって、それが必ず正解であるということではない。しかし、モデルに組み込んだ原理は、研究者が重要と考えている原理であり、研究者の予測です。シミュレーション結果が実験と合えば、自分の予測が正しいことを示すものであり、合わなければ予測の改善が要求されたことになり、何れの結果であっても研究が次のステージへの進むこととなります。この点が、数値シミュ

Condition	γ_{12}	γ_{23}	γ_{31}	Migration of triple junction
(A)	1	1	1	Not to move
(B)	1	0.1	0.1	To move upward
(C)	0.1	1	1	To move downward

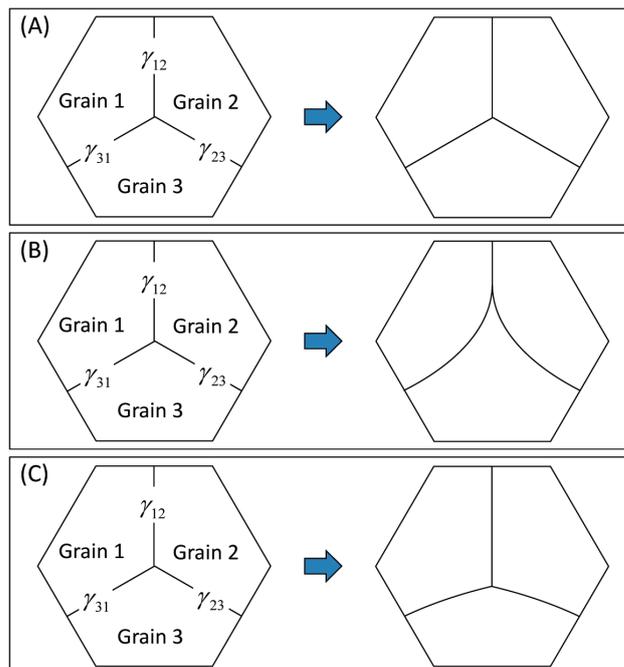


Fig.3 Migrations of triple junctions. A combination of three grain boundary energies decides how the triple junction moves.

レーションのもっとも有用な点であると考えています。

今回提案した二次元局所曲率マルチパートテックスモデルで解決されていない課題はまだ多くありますが、その中で私の重要と考えている基礎的な課題の1つは、三重点の易動度の取り扱いです。三重点の易動度は3つの粒界易動度が関与しているので粒界の易動度とは異なります。三重点の易動度に関するデータが十分でないことから、今回は三重点に繋がる3つの粒界の易動度の平均値としました。しかし、三重点の移動に伴い3つの粒界が移動する点を考慮した取り扱いとする必要があると考えており、今後検討していきたいと思えます。

また、ここでは触れませんでした。ピン止め粒子存在下での結晶粒成長シミュレーション結果は、二次元のZenerモデル⁸⁾の予測に対して大きくばらついてしまいました。このことについては、今後さらなる検討が必要であると考えています。

結晶粒成長シミュレーションでは、基礎データとして粒界エネルギー⁹⁾と粒界易動度¹⁰⁾を用います。残念ながら、鉄の基礎データが十分であるとは言い難い状況です。企業研究者としては、基盤研究の立場の方々によりこのような基礎データが拡充されることを強く望んでいます。

今後、鉄鋼材料の集合組織制御の科学的解明が進み、鉄鋼技術、鉄鋼材料がさらなる発展することを期待しています。

参考文献

- 1) 玉木輝幸, 村上健一, 潮田浩作: 鉄と鋼, 101 (2015), 211.; T.Tamaki, K.Murakami and K.Ushioda: ISIJ Int., 56 (2016), 1847.
- 2) T.Tamaki, K.Murakami, C.Hama and K.Ushioda: ISIJ Int., 55 (2015) 3, 655.
- 3) 玉木輝幸, 村上健一, 潮田浩作: 鉄と鋼, 101 (2015), 260.; T.Tamaki, K.Murakami and K.Ushioda: ISIJ Int., 56 (2016), 1857.
- 4) D.Fan and L.Q.Chen: Acta Mater., 45 (1997), 611.
- 5) T.Tamaki, K.Fujisaki, K.Wajima and K.Fujiwara: IEEE Transactions on Magnetics, 46 (2010) 2, 187.
- 6) T.Tamaki, K.Fujisaki, M.Yabumoto and N.Hamada: Przegląd Elektrotechniczny, 83 (2007) 2, 14.
- 7) Y.Ushigami and T.Nakayama: Mater. Sci. Forum, 157 (1994), 1081.
- 8) C.J.Smith: Trans. Metall. Soc. A.I.M.E., 175 (1948), 15.
- 9) F.J.Humphreys: Acta Mater., 45 (1997), 4231.
- 10) D.G.Brandon: Acta Metall., 14 (1966), 1479.

(2017年12月28日受付)