



躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

凝固組織・偏析シミュレーションの研究を続けて

Study on Numerical Simulations for Solidification Structure and Segregation

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

筆者は、卒業論文の研究テーマ以来、凝固組織シミュレーションを研究の軸としてきた。振り返ると約20年「凝固」を専門とした研究を続けている。金属の凝固研究は、決して最新研究分野ではないが、シミュレーションという比較的新しい研究方法のおかげでやりたいこと、やらなければならないことがまだまだたくさんあると感じている。今回「躍動」を執筆する機会を頂いたので、(もう若手という歳でもないが)筆者がこれまで行ってきた凝固組織と偏析のシミュレーション研究について述べさせて頂くこととする。

凝固シミュレーションは、1960年代の凝固伝熱解析に対する数値計算の利用から始まり、鋳物の引け巣や湯流れ予測、ミクロ偏析(デンドライト樹間の偏析)予測、マクロ偏析(液相流動等を伴う偏析)予測、凝固組織予測へと対象が拡大してきた。現在、凝固伝熱、引け巣・湯流れなどのシミュレーションは、様々なモジュールがパッケージ化された鋳造シミュレーションソフトとして多数商品化されている¹⁾。ミクロ偏析も1940年代にScheilの式²⁾が提案されて以来、現在ではThermo-CalcやPandataなどの熱力学計算ソフトの標準機能を使って簡単にシミュレーションできるようになっている。研究初期から考えると凝固シミュレーションは技術革新とともに確実に利用しやすいツールとなってきた。しかし、凝固組織やマクロ偏析は、いくつかのソフトウェアで計算可能ではあるものの適切な計算条件設定や結果の解析(解釈?)など、まだ専門的な知識を必要とするシミュレーションである。凝固組織とマクロ偏析のシミュレーションは、1990年代の前半頃にモデルや手法が盛んに研究された。Phase-field (PF) 法は組織シミュレーションの手法としてかなり浸透してきたと思うが、学会発表などでもまだ大学の基礎研究の方

が多い。マクロ偏析についても現象の複雑さと膨大な計算量から定量的な予測という観点では、まだまだ道半ばである。そこで本稿では、筆者の凝固組織およびマクロ偏析シミュレーションの研究に対する所感を交えて、その発展経緯と最新動向、今後の展望を述べさせて頂く。なお、「躍動」の記事であるため、解説や入門講座などのように数式等の詳細な説明は行わない。手法の詳細な説明は良書^{3,4)}や解説⁵⁾などを参照していただくこととする。

2 凝固組織シミュレーション

凝固組織シミュレーションの研究背景には、デンドライトのような複雑形態の成長機構の不思議を科学することに加え、ミクロ偏析予測の高精度化、鋳造プロセスの最適化など、組織制御技術の高度化を図る狙いがある。凝固組織シミュレーションの研究が盛んになったのは1990年頃からであり、特に小林亮先生のPF法によるデンドライト成長シミュレーション⁶⁾とM. Rappaz先生のCellular automaton (CA) 法による結晶粒組織シミュレーション⁷⁾は衝撃的であった。この2つの研究論文以降、PF法、CA法による材料組織シミュレーションが急速に発展し、凝固分野においても凝固組織シミュレーションの基礎ができた。現在、PF法がメソスケールの凝固組織シミュレーション手法の主流であり、最近ではスパコンを用いたデンドライト群の超大規模計算⁸⁾が行われるまでに発展した。図1はPF法による3次元デンドライト成長の計算例である。滑らかで凹凸の美しいデンドライト形態が表現されていることがわかる。PF法ではこのような曲線・曲面をたった1つの微分方程式(PF方程式)の解として表現できる。これは多くの研究者(特に計算屋)がPF法に魅力を感じる重要な点である。従来からGibbs-Thomson効果(曲率

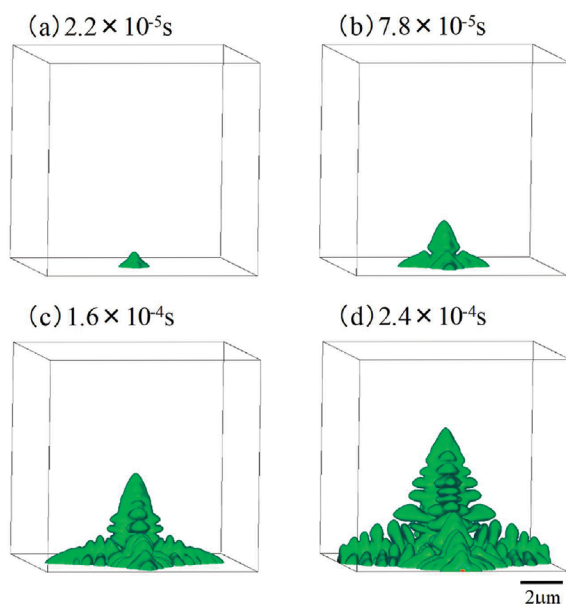


図1 PF法によるAl-Si合金の等軸デンドライト成長シミュレーションの一例

効果)を満たした移動境界問題を解くこと(Sharp interface method)で固液界面の形態を計算できることはわかっていった。さらに固液界面エネルギーに異方性を与えることでデンドライトのような方向性を持った形態が現れることも知られていた。しかし、Sharp interface methodでは、滑らかで美しいデンドライトを表現することはかなり難しい。PF法で滑らかな曲線・曲面が表現できる最大の理由は、有限の幅を持つ界面を考える点にある(diffuse interface)。この界面幅は、物理的に意味をもつものではなく、PF方程式が微分可能であることを保証するために必要な幅にすぎないが、2次元、3次元で曲線・曲面を描く数値計算では絶大な威力を発揮する。Sharp interface methodでは、界面幅はゼロと定義するため、固液界面に用いる計算要素は0個か1個であり、2次元で円形の界面を描こうとすると図2に示すように界面形状は階段状になってしまう。しかし、PF法では界面幅の中間値(固相を1、液相を0とすると界面位置は0.5)を界面と仮定すれば、界面を複数(一般的には5~10個)の計算要素を用いて表現できるため、より滑らかな曲線が表現できる。ただし、全体の計算対象物(デンドライトなど)に比べて界面幅は薄いものでなければならぬため、計算要素サイズは必然的に小さくなる。結果として計算要素数が多くなり計算負荷は大きくなる。さらに、Sharp interface methodと等価な界面移動を取り扱うためには、界面幅の中に正確な界面位置を定義できる適切なPFパラメータの数学的導出(漸近解析)が必要である⁹⁾。高精度な予測にPF法を適用するためには、PFパラメータの難解な数学的導出の理解も重要である。その点においてSharp interface methodは、PF法のような複雑な

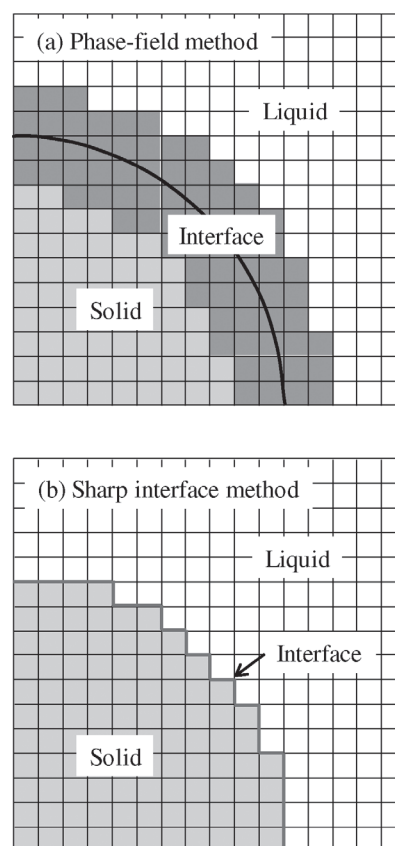


図2 メソスケールの手法における界面の取り扱いの模式図

数学的処理は必要なく、数式の理解は比較的容易である。現在、Sharp interface methodに分類される手法としてメソスケールのCA法などが発展しており、3次元でのデンドライト成長シミュレーションも可能となってきた。図3はメソスケールのCA法による等軸デンドライト群の計算例である。このCA法でも滑らかな界面形態のデンドライトが計算され、適切なデンドライト成長を解析できることがわかる。定量的な2次アーム間隔予測¹⁰⁾やミクロ偏析予測¹¹⁾も可能である。また、図4はこのCA法を多相系に拡張したモデルを用いてFe-C合金の過包晶組成の凝固組織形成過程をシミュレーションしたものである。初晶 δ 相がデンドライト状に形成した後、 δ 相を取り囲むように γ 相が形成し、 δ 相が先に消失して γ 相単相へと変態が進行している様子がわかる。このようなモデルの拡張性の高さはCA法の利点の一つであり、理論式が確立していない場合でも、隣接するセル間の規則を適切にモデル化できれば、モデルの拡張は比較的容易に行える。また、PF法と比較して計算負荷が小さいことも利点の一つである。筆者の学生時代の研究テーマは、PF法を基盤とした凝固組織シミュレーションであったが、このようなCA法の利点に魅力を感じ、学位取得後はCA法を基盤とした研究に舵を切った。CA法でも想像以上に様々な解析が可能であり、第2のメソスケール凝固組織形成モデルとしての可

能性をこれからも探究し続けていきたいと考えている。

次に、マクロスケールの凝固組織（結晶粒組織）シミュレーションである。マクロスケールの凝固組織シミュレーションの現在の主流はCA法である。説明が前後するが、CA法とは、空間をセルと呼ばれる格子で敷き詰め、注目セルと隣接するセル間の規則に従って注目セルの状態を変化させ、自然に何らかのパターンを形成させる手法（自己組織化）である。セル間の規則を変えればどのようなものでもシミュレーションの対象にできるため、多くの分野で用いられてい

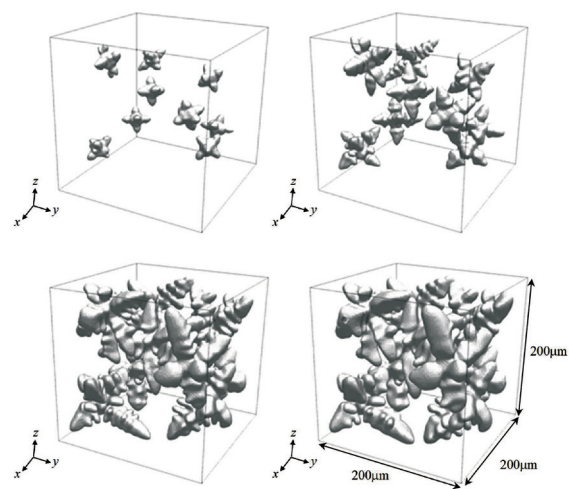


図3 メソスケールのCA法によるAl-Si合金の等軸デンドライト成長シミュレーションの一例

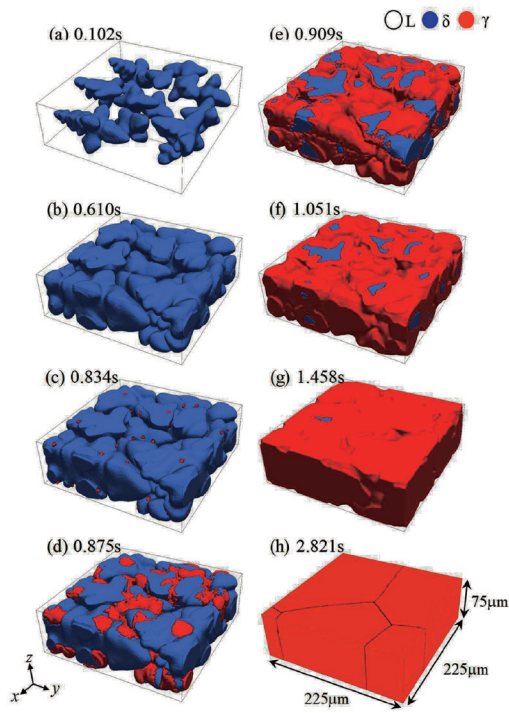


図4 メソスケールのCA法による過包晶反応を伴うFe-C合金の凝固組織形成シミュレーションの一例

る方法である⁴⁾。前述したメソスケールの凝固組織では固液界面の移動による相の変化がセル間の規則である。一方、マクロスケールの凝固組織では、図5のようにデンドライトをDendrite envelope (DE) で近似し、結晶粒を組織の最小構成としてDEの移動による結晶粒成長がセル間の規則となる。本稿ではメソスケールのCA法を先に紹介したが、凝固組織シミュレーションにおけるCA法の元祖はやはりM. Rappaz先生のマクロスケールのCA法である。その後、Ch.A.Gandin先生によって結晶粒成長アルゴリズムが改良され、現在、CAFÉ (Cellular Automaton Finite Element) モデルとして有名になっている¹²⁻¹⁴⁾。筆者も結晶粒成長アルゴリズムの改良を検討したことがあるが、Ch.A.Gandin先生のア

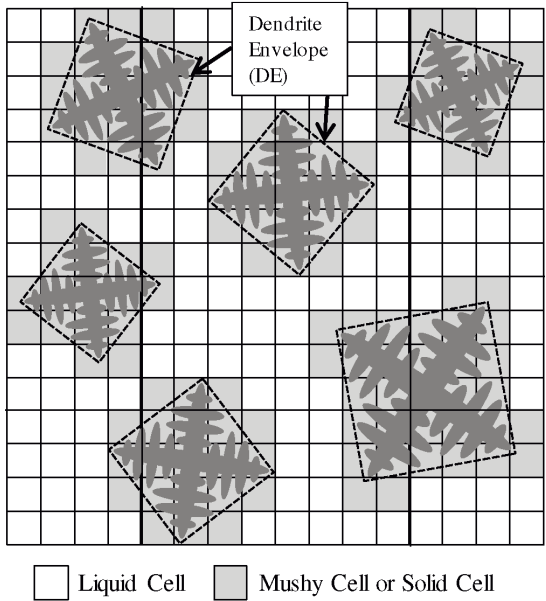


図5 マクロスケールのCA法における結晶粒成長の模式図

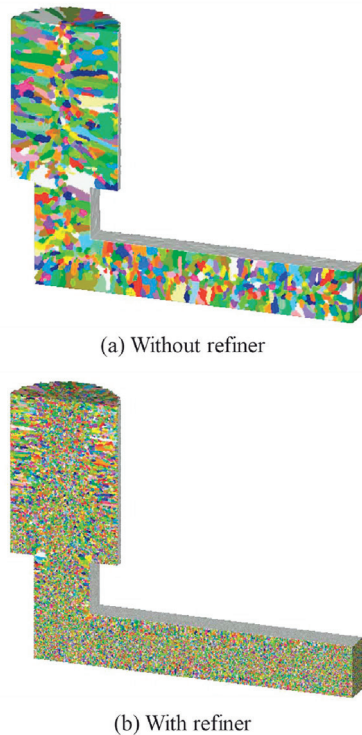


図6 マクロスケールのCA法によるAl-Si合金の砂型鑄造のマクロ組織シミュレーションの一例

3 マクロ偏析シミュレーション

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であるため、基本コンセプトの理解は比較的容易である。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ることである。流れ場の計算法は、数値流体力学の分野で様々な数値計算スキームが提案されているが、基本的には計算負荷が高い。マクロ偏析シミュレーションでも固液共存領域の高固相率領域や凝固収縮を考慮した場合などの流れ場計算で、計算時間が膨大になる。従って、計算要素サイズを粗くしたり、2次元シミュレーションで留めたりするなど、計算条件に妥協が必要である。したがって、マクロ偏析シミュレーションの研究は1990年代頃から多数発表されているものの、マクロ偏析を定量的に予測するのはまだ難しいのが現状である。また、マクロ偏析の予測には、計算負荷の低減だけではなく、支配方程式を解くために必要な物性値や各種パラメータの精度も重要であり、その一つが透過率である。透過率とは、固液共存領域の液相の流れやすさを示すパラメータである。マクロ偏析シミュレーションでは、1つの計算要素内に複数のデンドライトがネットワークを組んで存在していることを仮定し、そのデンドライト間を液相がどの程度流れることができるかを透過率として与えて

いる。すなわち、現状のモデルでは透過率は凝固組織に直接関連する唯一のパラメータである。

マクロ偏析シミュレーションが行われる以前の1980年代以前から実験による透過率測定が精力的に行われていたことから、透過率の重要性がわかる。最近では数値シミュレーションを用いた透過率評価²¹⁻²⁴⁾も行われ、筆者もPF法と数値流体解析を組み合わせる柱状デンドライト組織の透過率評価²²⁾を行い、柱状デンドライト組織における透過率のモデル化²³⁾も行った。この透過率の研究をきっかけに本格的なマクロ偏析シミュレーションの研究を始めた。先に述べたように基本プログラムの開発はそれほど難しくなかったが、実際のマクロ偏析の実験試料と比較し、定量的な予測をするために細部を検討すると非常に難しい問題が多数存在することに気づかされた。適切な透過率とは何なのか、組織形成に伴う流れ場の変化をどのように考慮すれば良いのか、計算精度に関わる各種パラメータや計算法には何を用いれば良いのかなどである。透過率に関しては、1オーダー違うだけでマクロ偏析のパターンが全く異なってしまうため、当然であるがアーム間隔のような組織サイズを無視した透過率を用いることは適切ではない。メソスケールの凝固組織シミュレーションと直接連成することで透過率そのものを考える必要がなくなり問題は解決するように思えるが、マクロ偏析シミュレーションに対してメソスケールの凝固組織シミュレーションの計算要素サイズは小さすぎるため、現実的にはシミュレーションは不可能である。したがって、マクロ偏析シミュレーションには適切な組織形成を反映したDarcy流れの考慮（透過率の考慮）が必須である。また、マクロ偏析の生成には自由晶などの固相移動の影響も考慮する必要がある。このように、定量的なマクロ偏析予測には、マルチスケール・マルチフィジックスの非常に複雑なモデルを用いなければならない。近年、多流体モデル（液相と固相を個別の流体と考えるモデル）によるマクロ偏析シミュレーションも報告されている^{19,20)}。筆者は、マルチスケール・マルチフィジックスモデルの第一歩としてマクロスケールのCA法とマクロ偏析モデルを連成したモデルを構築した。図7は、その連成モデルを用いたAl-Mg合金の縦一方向凝固シミュレーションの計算例である¹⁷⁾。溶質分配により排出されたMgが比重差によって浮上し、上部で濃化してマクロ偏析を生成している。また、Mgの浮上と同時に底部から成長した柱状晶が粗大化する組織変化が起こっていることがわかる。これらの結果からマクロ偏析は凝固組織形成と相互に関連しながら、生成していくことが明らかとなり、このような結果は単独のマクロ偏析シミュレーションでは得られない結果である。今後、実験との比較などでモデルを評価する必要があるが、マルチスケール・マルチフィジックスの課題解決に向けた第一歩として、今後

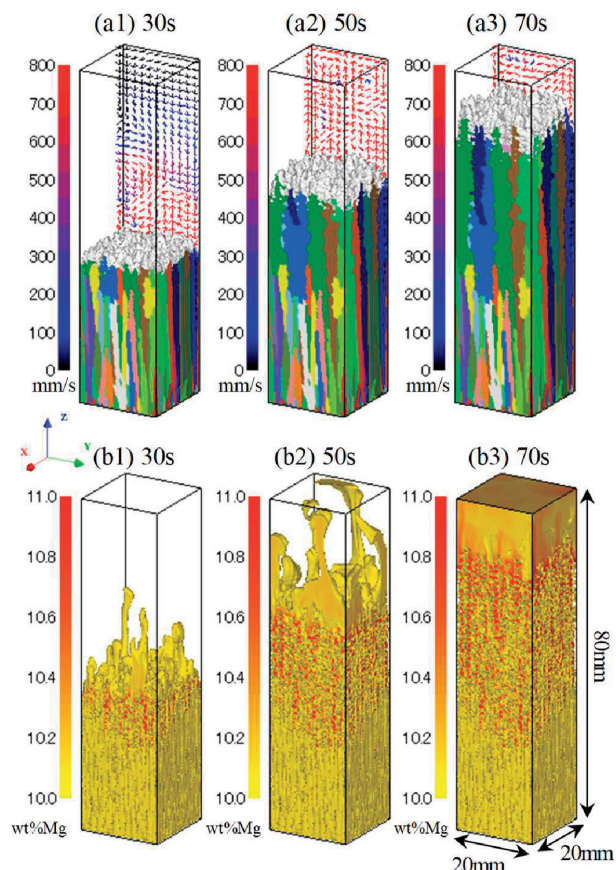


図7 マクロスケールのCA法とマクロ偏析モデルを連成したモデルによるAl-Mg合金の一方向凝固シミュレーションの一例(上段:組織、下段:Mg濃度)

もこれらのモデルの研究を続けていきたいと考えている。また、マクロ偏析シミュレーションには、計算負荷が極めて高いという課題もあるため、計算の高速化技術の開発も今後の研究のポイントになるだろう。

4 おわりに

本稿では凝固組織シミュレーションとマクロ偏析シミュレーションの発展経緯と今後の展望について、解説などとは異なる視点で紹介した。これらのシミュレーションも多くの研究者や技術者が利用しやすいツールとなるように、今後も微力ながら凝固組織・偏析シミュレーションの研究を続けていきたい。また、シミュレーションモデルの高度化には計算高速化が不可欠であり、機械学習などを活用した数値シミュレーションの高速化手法などの導入も凝固組織・偏析シミュレーションを新たなフェーズへ進展させるために検討していかなければならない課題の一つであろう。最後に、恩師の大笹憲一先生をはじめとする凝固分野の研究者の皆様のご指導のおかげでここまで凝固組織シミュレーションの研究を進めることができました。紙面をお借りして皆様に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) Y.Maeda : J.JFS, 86 (2014), 905.
- 2) E.Scheil : Z. Metallkd., 34 (1942), 70.
- 3) 高木知弘, 山中晃徳 : フェーズフィールド法, 養賢堂, (2012)
- 4) 加藤恭義, 光成友孝, 築山洋 : セルオートマトン法, 森北出版, (1998)
- 5) 棗千修 : ふえらむ, 19 (2014), 251.
- 6) R.Kobayashi : Physica D, 63 (1993), 410.
- 7) M.Rappaz and Ch.-A.Gandin : Acta Metall. Mater., 41 (1993), 345.
- 8) T.Takaki, T.Shimokawabe, M.Ohno and A.Yamanaka : J. Crystal Growth, 382 (2013), 21.
- 9) M.Ohno and K.Matsuura : Phys. Rev. E, 79 (2009), 031603.
- 10) 棗千修 : 鑄造工学, 87 (2015), 636.
- 11) Y.Natsume : ISIJ Int., 56 (2016), 1376.
- 12) Ch.-A.Gandin and M.Rappaz : Acta Metall. Mater., 42 (1994), 2233.
- 13) Ch.-A.Gandin and M.Rappaz : Acta Metall. Mater., 44 (1996), 3339.
- 14) Ch.-A.Gandin and M.Rappaz : Acta Metall. Mater., 45 (1997), 2187.
- 15) T.Carozzani, Ch.-A.Gandin, H.Digonnet, M.Bellet, K.Zaidat and Y.Fautrelle : Metall. Mater. Trans. A, 44 (2013), 873.
- 16) S.Chen, G.Guillemot and Ch.-A.Gandin : Acta Mater., 115 (2016), 448.
- 17) 棗千修 : 鉄と鋼, 103 (2017), 730.
- 18) 棗千修 : 鉄と鋼, 103 (2017), 738.
- 19) M.Wu, A.Ludwig and A.Kharicha : Appl. Math. Model., 41 (2017) 102.
- 20) M.Wu, A.Ludwig and A.Kharicha : Steel Research Int., 89 (2018), 1700037.
- 21) J.Madison, J.Spewart, D.Rowenhorst, L.K.Aagesen, K.Thornton and T.M.Pollock : Acta Mater., 58 (2010), 2864.
- 22) 棗千修, 高橋大喜, 河嶋佳純, 谷川英司, 大笹憲一 : 鉄と鋼, 99 (2013), 117.
- 23) Y.Natsume, D.Takahashi, K.Kawashima, E.Tanigawa and K.Ohsasa : ISIJ Int., 53 (2013), 838.
- 24) T.Takaki, S.Sakane, M.Ohno, Y.Shibuta and T.Aoki : Acta Mater., 164 (2019) 237.

(2020年3月2日受付)

先輩研究者・技術者からのエール

東北大学大学院工学研究科 金属フロンティア工学専攻 教授

及川 勝成

棗 先生は、学部学生の時代から一貫して、凝固の研究を進めて来られています。そういう意味では、筆者よりもずっと長く凝固を研究されていると思います。そのため、先輩研究者と言っても年齢だけで、筆者がこの記事を担当するのも相応しいかどうか、躊躇いました。しかし、凝固・組織形成フォーラムなどでいつもお世話になっている棗先生からの依頼でもあるので、コメント役をお引き受けいたしました。

棗先生との出会いも、10年以上前に遡るため正確な記憶ではないのですが、まだ、神戸製鋼所に勤務されていたと思います。既に、棗先生の博士論文での研究成果であるセルオートマトンによる凝固組織予測の結果は、その分野の人には知られており、若手の気鋭の研究者として期待されておりました。鑄造や凝固の分野は、市販のシミュレーションソフトなども販売され、学術的にも確立された古い分野と思われがちです。しかし、実際の製造のことを考えると、あるプロセスで、どんな凝固組織が得られ、マクロ、ミクロ偏析はどう変化し、どこに鑄造欠陥が現れるかなどは予測することは困難です。棗先生の強みというのは、ずっと学側にいたのではなく、産側で実際のものづくりの現実を見て来たことだと思いま

す。学側だけにいると、シミュレーションも、どんどん物理よりの原子レベルからの理解をしたいと思うようになります。しかし、産業側で求められる知見はもっとマクロ的な話が多く、鑄造・凝固の分野では、異なるスケールの問題をどうブリッジングして解釈していくかというの大きな問題となります。

棗先生は、このような凝固の問題に真摯に取り組んでおられます。学術的知見の重要さだけでなく、ものづくりに役立つ知見を数多く報告されております。Cellular automaton法やPhase field法など新しい計算手法をいち早く導入するだけでなく、それらを熱・流体計算と連成させることによるマクロ偏析予測など先進的な研究を次々と発表されております。今後は、機械学習も取り入れた数値シミュレーションの高速化を検討されているとのコメントもあり、凝固組織・偏析シミュレーションの分野の研究を益々発展させていただけるものと思います。

日本では、鑄造や凝固の分野の大学教員の数が、急激に減少しておりますが、凝固は鉄鋼製品の品質を左右する重要な分野です。この分野をリードする研究者として、益々活躍することを期待しております。

日本製鋼所M&E(株) 室蘭研究所 所長

梶川 耕司

棗 先生とは先生が大学院学生のときに初めてお会いしたので、もう20年近いということになります。鉄鋼協会北海道支部のノースフォーラム研究会がお目にかかった最初だったと思います。そのときはコンピュータオタクのような感じ(失礼!)のやや尖がった学生だなあとの印象を受けたことを覚えています。ただ当時からシミュレーション技術・数値解析技術に関する能力は非常に高いことが感じられ、数式を見ればたちどころに理解をされていたのが印象的でした。棗先生は卒業されてからポスドク研究員で大学にしばらく残ったのちに、神戸製鋼所に就職されています。民間企業に勤められたことで、産業における凝固研究の重要性を認識されたのだと感じています。その頃になると尖った感じは薄れ、企業の事情も理解された発言をされるようになりました。棗先生の神戸製鋼所時代の業績の一つが、柱状デンドライト組織における透過率の評価があります。これはフェーズフィールド法で柱状デンドライトを作製し、その中に液相を流した時の液相透過率を算出するという研究でした。その後秋田大学に移られてからこれを発展させて3次元での計算をされています。ただし3次元柱状

デンドライト計算は計算負荷が高いので、2次元デンドライトを作って主軸となる1次枝の周りに4等配で2次枝を配置して3次元デンドライトを作るというアイデアで計算を簡素化されていました。この論文を見た某教授が「これはやられたなあ」と言っていたのを覚えています。多分アイデアを温めている内に棗先生に先を越されてしまったのではないかと推察します。アカデミックに原理原則だけで追及していくと解が得られるまで時間がかかる問題も一部簡略化することで答えを早く出せるということがあります。一度大学を出て企業研究者となって自身の視野を広げられたことが棗先生の研究内容の幅の広さや思考の柔軟さに繋がっていると感じています。現在、先生が再び取り込んでいるテーマにセル・オートマトン(CA)法があります。フェーズフィールド(PF)法の隆盛に伴ってやや影に潜んだ感じのCA法ですが、計算負荷がPF法よりも軽い、モデルの拡張性が高いといった利点に着眼してCA法でマクロスケールモデルに取り込んでいるのも棗先生ならではの視点だと思います。今後も独自の視点を生かした研究成果で凝固の分野を発展していただけることを期待しております。