

セルラー・オートマトンを用いた凝固組織の予測

中島敬治*, 溝口庄三*

Prediction of Solidification Microstructure Using Cellular Automaton

By Keiji NAKAJIMA and Shozo MIZOGUCHI

1. はじめに

素材における機械的性質向上を図るために、微細かつ均一な凝固組織を得ることが望ましい。素材製造プロセスにおいて凝固組織制御は重要な課題である。このため凝固組織予測の必要性が増し、その予測の試みが活発に行われている。これまで凝固に関する解析は、温度、固相率、デンドライト・2次アーム間隔、融液中の溶質濃度などを予測する伝熱凝固解析（決定論的アプローチ）[1-4]が主であった。一方、凝固組織予測に関しては、最初、モンテカルロ法[5]（確率論的アプローチ）が適用されたが、これは優先成長方位を考慮しないなど、デンドライト成長に対する物理的基盤が弱いために凝固条件の影響が反映しにくいという問題点があり、近年まで実用に富む精度に達していなかった。

しかしながら Rappaz and Gandin[6]は再結晶集合組織計算[7]に適用されたセルラー・オートマトン（確率論的アプローチ）を凝固組織予測に発展させた。すなわち有限要素法による伝熱凝固計算とセルラー・オートマトンによる凝固組織計算を完全に連成させた手法を開発した。この方法は核生成を確率分布と見なし、デンドライト先端の成長を計算し、優先成長方位を考慮し、熱流方向と結晶の優先結晶成長方位の関係、デンドライト間の競争も明らかにできた。そして伝熱凝固と組織形成の計算が互いにフィードバックされ、物理的基盤に基づいた凝固組織予測が可能となってきた。現在までに3次元の計算モデル[8,9]へと発展し、実際の凝固組織とよく一致する結果が得られている。またその後、これを基にした様々な凝固組織予測計算が報告されている[10-13]。

本稿では、この種の論文にあまり扱われていない多成分系素材の凝固組織予測を念頭におき、Kobayashi[1]の考え方を基にした凝固伝熱モデル（決定論的アプローチ）と Rappaz and Gandin[6]の考え方を基にした組織形成モデル（確率論的アプローチ）をまず概説し、その後、それらの新たな連成を試みた。その際、実用の低炭素アルミニウム・キルド鋼において連続鋳造鋳片の凝固組織を再現させた。

2. 溶質偏析効果を考慮した伝熱凝固モデル（決定論的アプローチ）

凝固中の鋼に対し従来の一般的伝熱モデルが即座に利用できる。しかしながら凝固過程に対する伝熱モデルの大部分は、おそらく溶質再分配についての詳細な知識の欠如のために、溶質偏析を無視している。そこで、まず Kobayashi[1]の考え方を基にした凝固伝熱モデル（決定論的アプローチ）の連続鋳造鋳片への展開を紹介する（Fig.1 参照）。すなわちデンドライト凝固モデルの近似解を基に溶質偏析効果を考慮した多成分系素材鋳片の凝固過程に対する解析法を概説する。この方法は熱伝導方程式と拡散方程式を連立させて解くことを特徴とする。 δ/γ 変態、MnS の析出、冷却速度に伴うデンド

ライト・アーム間隔も考慮する。

いま連続鑄造鑄片の凝固過程を考える。鑄造方向における熱移動は他方向におけるそれに比べて無視できるという仮定の下に、鑄片断面における熱伝導が2次元非定常熱伝導方程式で表せる。

$$H_{n+1} = H_n + \nabla \cdot (\kappa \Delta T_n) \Delta t \quad (1)$$

ここで、 H_n は時刻 n における単位体積あたりのエンタルピ、 κ は熱伝導度、 T_n は時刻 n における温度、 Δt は微小時間間隔である。

一方、デンドライト凝固モデルに対する拡散方程式の近似解[1-4]のうち、Kobayashi[1]による解を用いれば、局所凝固速度 df_s^2/dt 、デンドライト・2次アーム間隔 λ 、成分 j の固相 S (δ または γ)と液相 L 間の平衡分配係数 $k_j^{S/L}$ 、成分 j の固相における拡散係数 D_j が微小時間間隔 Δt の間、一定であるという仮定の下に、時刻 $n+1$ におけるある体積要素の液相の成分 j の濃度 $C_{j,n+1}$ が、固相率 $f_{S,n+1}$ の関数として、つぎのように表せる。

$$C_{j,n+1} = (C_{j,n} - \Delta C_{j,n}) \left(\frac{P_{j,n+1}}{P_{j,n}} \right)^{\zeta_j} \left[1 + \frac{k_j^{S/L} (1 - k_j^{S/L}) \beta_j^3}{2\gamma_j (1 - \beta_j k_j^{S/L})^3} (Q_{j,n+1} - Q_{j,n}) \right] \quad (2)$$

および

$$P_{j,n} = 1 - (1 - \beta_j k_j^{S/L}) f_{S,n}$$

$$Q_{j,n} = \left(1 - \frac{1 + \beta_j}{2} k_j^{S/L} \right) \frac{1}{P_{j,n}^2} - (5 - (2 + 3\beta_j) k_j^{S/L}) \frac{1}{P_{j,n}} - (3 - (1 + 2\beta_j) k_j^{S/L}) \ln P_{j,n}$$

$$\gamma_j = \frac{8D_j \Delta t}{\lambda^2 (f_{S,n+1}^2 - f_{S,n}^2)}$$

$$\beta_j = \gamma_j / (1 + \gamma_j)$$

$$\zeta_j = \frac{k_j^{S/L} - 1}{1 - \beta_j k_j^{S/L}}$$

ここで、 $\Delta C_{j,n}$ は時刻 n におけるMnS析出による溶質濃度変化である。

いま時刻 $n+1$ におけるある体積要素の温度 T_{n+1} を考える。そして固液界面における局所平衡を仮定する。このときKobayashiら[14]、Tiller[15]の考え方に従えば、時刻 $n+1$ におけるある体積要素の液体と固体の平衡温度 T_{LS} が、合金が稀薄溶液でありラウール理想挙動を呈するという仮定の下で、 $C_{j,n+1}$ 、すなわち $f_{S,n+1}$ によって一義的に決定される。

$$\frac{1}{T_{LS}} = \frac{1}{T_{LS}^0} + \frac{R}{\Delta H_{LS}} \sum_j (1 - k_j^{S/L}) \frac{C_{j,n+1}}{W_j}, \quad S = \delta \text{ または } \gamma \quad (3)$$

同様に、時刻 $n+1$ におけるある体積要素の δ/γ 変態温度 $T_{\delta\gamma}$ が次式で与えられる。

$$\frac{1}{T_{\delta\gamma}} = \frac{1}{T_{\delta\gamma}^0} + \frac{R}{\Delta H_{\delta\gamma}} \sum_j (k_j^{\delta/L} - k_j^{\gamma/L}) \frac{C_{j,n+1}}{W_j} \quad (4)$$

ここで T_{LS}^0 、 $T_{\delta\gamma}^0$ はそれぞれ純鉄の液相線温度、 δ/γ 変態温度、 ΔH_{LS} 、 $\Delta H_{\delta\gamma}$ はそれぞれ融解熱、 δ/γ 変態のエンタルピ、 W_j は成分 j の原子量である。なお δ/γ 変態が温度 $T_{\delta\gamma}$ で突然起こると仮定した。

それゆえ時刻 $n+1$ におけるエンタルピー H_{n+1} が利用できるとき、固相率 $f_{S,n+1}$ が次式を満足するように決定される。

$$\frac{H_{n+1}}{\rho\Delta H} - \frac{C_p}{\Delta H} T_{n+1} (f_{S,n+1}) + f_{S,n+1} - 1 = 0 \tag{5}$$

なぜならエンタルピーは次式で温度に関連づけることができるからである。

$$H_{n+1} = \rho\Delta H(1 - f_{S,n+1}) + \rho C_p T_{n+1} \tag{6}$$

ここで、 ρ は密度、 C_p は比熱である。

Kobayashi[1]の考え方を基にした凝固伝熱モデルの連続铸造铸片へのこの展開によって、所定の凝固条件：融液過熱度、外部冷却、組成下での铸片内各体積要素における過冷度、凝固速度（もちろん温度、固相率、溶質濃度、デンドライト・2次アーム間隔を含む）が各時刻毎に計算できる。これらの因子は後述するセルラー・オートマトンと関連する。

3. セルラー・オートマトンによる組織形成モデル（確率論的アプローチ）

つぎに Rappaz and Gandin[6]の考え方を基にした組織形成モデル（確率論的アプローチ）を紹介する。彼らに従い、铸片で観察される最終凝固組織は3つの主現象によって決定されると考える。まず不均質核生成である。Thevozら[16]による連続核生成の考えを基本にし、ある瞬間に铸型壁、バルク融液で核生成された結晶粒サイト密度は過冷度の関数であるとする。その分布特性を平均過冷度 ΔT 、その標準偏差 ΔT_o 、結晶粒の最大サイト密度 n_{max} のガウス関数で記述する。これらの新しく核生成された結晶粒は柱状晶の成長を止める。よって柱状・等軸晶遷移という結果に帰着する。つぎに優先成長方位である。新しく核生成される結晶粒に対し、そのサイト位置、結晶学的方位をランダムに選択する。そこで優先成長方位を持つ結晶粒は、非優先方位を持つ結晶粒よりも早く成長するとする。これは柱状晶領域の淘汰に帰着する。最後に溶質偏析効果である。凝固過程における溶質偏析効果を考慮

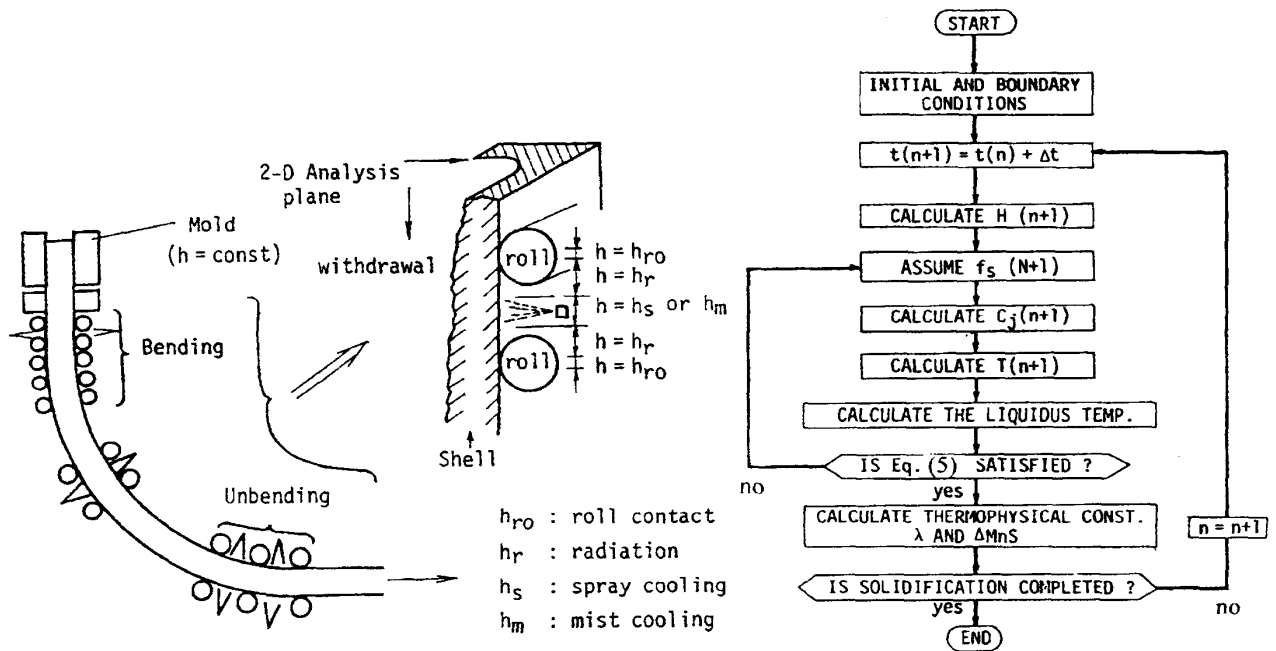


Fig. 1 Schematic diagram on a “deterministic” heat transfer and solidification approach with consideration on solute segregation for continuously cast slab.

することにより, 核生成に関連する過冷度, その成長に関連する凝固速度が凝固伝熱解析 (決定論的アプローチ) から導ける. これによって組織形成と融液過熱度, 外部冷却, 組成などが暗黙のうちに関連づけられ, 物理的基盤に基づいた凝固組織予測が可能となる. これらのうち, 溶質偏析効果については, Rappaz and Gandin[6]が用いたデンドライト先端成長に関する KGT モデル[17]の代わりに, ここでは多成分系素材に対し適用できる上述のデンドライト凝固モデルの使用を試みる. 核生成, 成長については, Rappaz and Gandin[6]による考え方をそのまま用いる. 以下にそれらを概説しておく.

<核生成>

Fig.2 に基づき, 核生成の基本的考え方を概説する. 過冷度の増加 $d(\Delta T)$ により引き起こされた結晶粒サイト密度増加 dn を記述するために, 連続核生成分布 $dn/d(\Delta T)$ を用いる. ある過冷度 ΔT で核生成された結晶粒の全サイト密度は, この積分により与えられる.

$$n(\Delta T) = \int_0^{\Delta T} \frac{dn}{d(\Delta T')} d(\Delta T') \tag{7}$$

$$\frac{dn}{d(\Delta T')} = \frac{n_{max}}{\sqrt{2\pi} \cdot \Delta T_{\sigma}} \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\Delta T' - \overline{\Delta T}}{\Delta T_{\sigma}}\right)^2\right] \tag{8}$$

微小時間間隔 δt の間に温度は δT だけ減少する. よって過冷度は $\delta(\Delta T)$ だけ増加する. このとき融液内で核生成された結晶粒サイト密度増加は次式で与えられる.

$$\delta n = n[\Delta T + \delta(\Delta T)] - n(\Delta T) = \int_{\Delta T}^{\Delta T + \delta(\Delta T)} \frac{dn}{d(\Delta T')} d(\Delta T') \tag{9}$$

微小時間間隔 δt の間, あるセルサイト (体積 V_{CA}) 内で核発生する個数 (核生成相対確率) p_v を定義する.

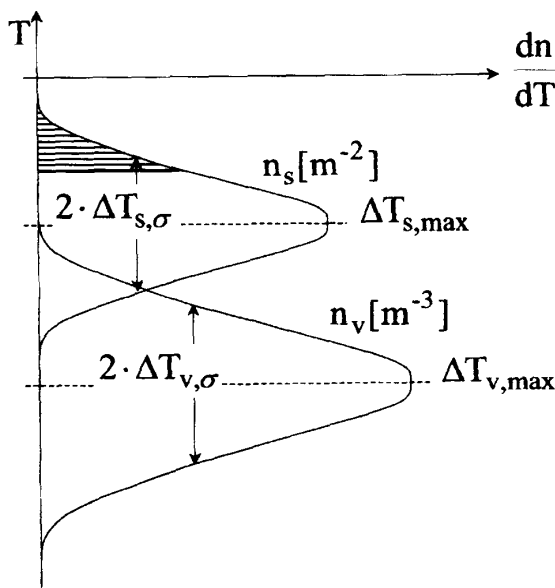


Fig. 2 Nucleation site distribution for nuclei formed at the mold wall and in the bulk of the melt. After Gandin and Rappaz [6].

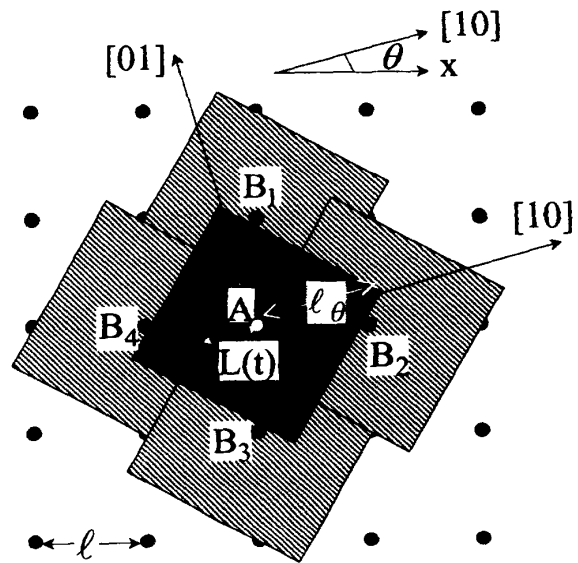


Fig. 3 Details of the growth of one cellular automaton cell. After Gandin and Rappaz[6].

$$p_v = \delta n \cdot V_{CA} < 1 \quad (10)$$

ランダムな数 r ($0 \leq r \leq 1$) が各セルサイトに発生されたとき, $r \leq p_v$ ならば, まだ融液であるセルサイトに核生成が起こるとする.

<成長>

Fig.3 に基づき, 成長の基本的考え方を概説する. 融液において新しく核生成された結晶粒は $\theta = (\pi/4) \cdot 2 \cdot (r - 0.5)$ なるランダムな結晶学的方位 θ ($-\pi/4 \sim \pi/4$) を持つとする.

ある時刻 t_N において核生成された "A" とラベルされたセルサイトを考える. このセルサイトの範囲設定をする黒い正方形は半対角線 $L(t)$ を持つ. $L(t)$ は界面速度 v の成長時間 $t_N \sim t$ に亘る積分によって, 与えられる.

$$L(t) = \int_{t_N}^t v [\Delta T(t')] dt' \quad (11)$$

ある時刻 t_B において, 正方形結晶粒は "B1" から "B4" とラベルされた 4 つの最近接サイトにタッチする. すなわち斜線が施された正方形 A に対して, これが起こる. この正方形 A の半対角線 $L(t_B)$ は距離 $l_\theta = l[\cos\theta + |\sin\theta|]$ に等しい. ここで l はセルサイトのネットワーク間隔である. 結晶粒の拡張は完全に決定論的ではない. よって最近接サイトの取り込みは $L(t) = l_\theta$ のとき (すなわち $t = t_B$ のとき), 確実に起こるわけではない. 結晶粒拡張のこの確率論的性質を反映するために, 最近接サイトへの到達度 (取り込み相対確率) p_g を定義する.

$$p_g = L(t)/l_\theta < 1 \quad (12)$$

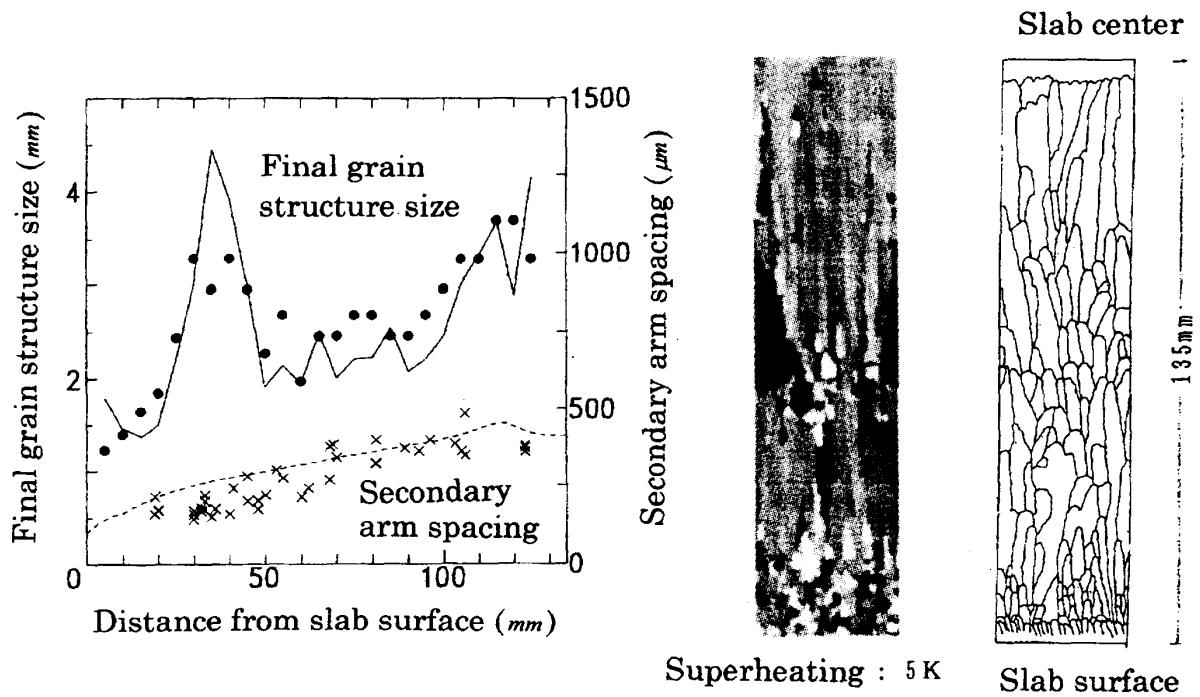
ランダムな数 r ($0 \leq r \leq 1$) が各々のセルサイトに対して発生されたとき, $r < p_g$ ならば, サイト B はサイト A によって取り込まれるとする.

4. 伝熱凝固モデルと組織形成モデルの連成

実用の低炭素アルミニウム・キルド鋼における連続铸造鑄片の凝固組織予測のために, 本稿において, 上述した Kobayashi[1]の考え方を基にした凝固伝熱モデル (決定論的アプローチ) と Rappaz and Gandin[6]の考え方を基にした組織形成モデル (確率論的アプローチ) の新たな連成を試みた. Fig.4 に, 計算で用いた核生成に関するパラメータを併記した. 下添字 s は鑄型壁, v はバルク融液に関するものである. まず結晶粒の最大サイト密度について述べよう. ここで記載した融体中で生成できる結晶粒の最大サイト密度 $n_{s,\max}$ (cm^{-2}) および $n_{v,\max}$ (cm^{-3}) は 3 次元に対応する. そこで 2 次元計算に対する相対値 $n_{s,\max}^*$ (cm^{-1}) および $n_{v,\max}^*$ (cm^{-2}) を推定するために, つぎのような stereological 関係を用いた.

$$n_{s,\max} = \frac{\pi}{4} (n_{s,\max}^*)^2, \quad \text{および} \quad n_{v,\max} = \sqrt{\frac{\pi}{6}} (n_{v,\max}^*)^{3/2} \quad (13)$$

$n_{s,\max} = 250cm^{-2}$ は $n_{s,\max}^* = 17.84cm^{-1}$ に相当する. これは, 鑄型壁では最大で約 $560\mu m$ の間隔毎に結晶粒サイトが核発生することを意味する. この値は実際の鑄片表面のデンドライト・1 次アーム間隔に対応する. $n_{v,\max} = 100cm^{-3}$ は $n_{v,\max}^* = 26.73cm^{-2}$ に相当する. これは, バルク融液では最大で約 $1930 \times 1930\mu m^2$ の領域毎に結晶粒サイトが核発生することを意味する. 前者は鑄型冷却条件, 鑄型フラックスなどに影響され, 後者は不純物, 融液流動に強く影響される. しかしながら, ここでは単純化のために, これらのパラメータは一定とした. これに基づき, 鑄片サイズの関係からセルサイトのネットワーク間隔 l を $338\mu m$ とした. つぎにバルク融液の平均過冷度 $\overline{\Delta T_v}$, その標準偏差 $\Delta T_{v,\sigma}$ について述べる. 大橋ら [18]によれば, 電解鉄中に Al_2O_3 が存在する場合, $\overline{\Delta T_v} = 13.9K$, $\Delta T_{v,\sigma} = 8.6K$ と報告されている. しかし実用の低炭素アルミニウム・キルド鋼では, 不純物, 融液流動の影響が大きく, もっと小さな過冷度で核生成すると考えた.



(a) Comparison of calculated and experimental secondary arm spacing of dendrite and grain size.

(b) Comparison of calculated and experimental grain Structures.

Fig. 4 Secondary arm spacing of dendrite and final grain structure of continuously cast slab of low carbon steel for casting conditions (slab size: 1350x270mm, casting velocity: 1.78m/min, super heating: 5K, chemical composition: C=0.07, Si=0.19, Mn=0.31, P=0.034, S: 0.009mass%) and nucleation conditions ($\Delta T_S=0.5K$, $\Delta T_{S,\sigma}=0.1K$, $n_{S,max}=250cm^{-2}$, $\Delta T_V=3.0K$, $\Delta T_{V,\sigma}=1.0K$, $n_{V,max}=100cm^{-3}$).

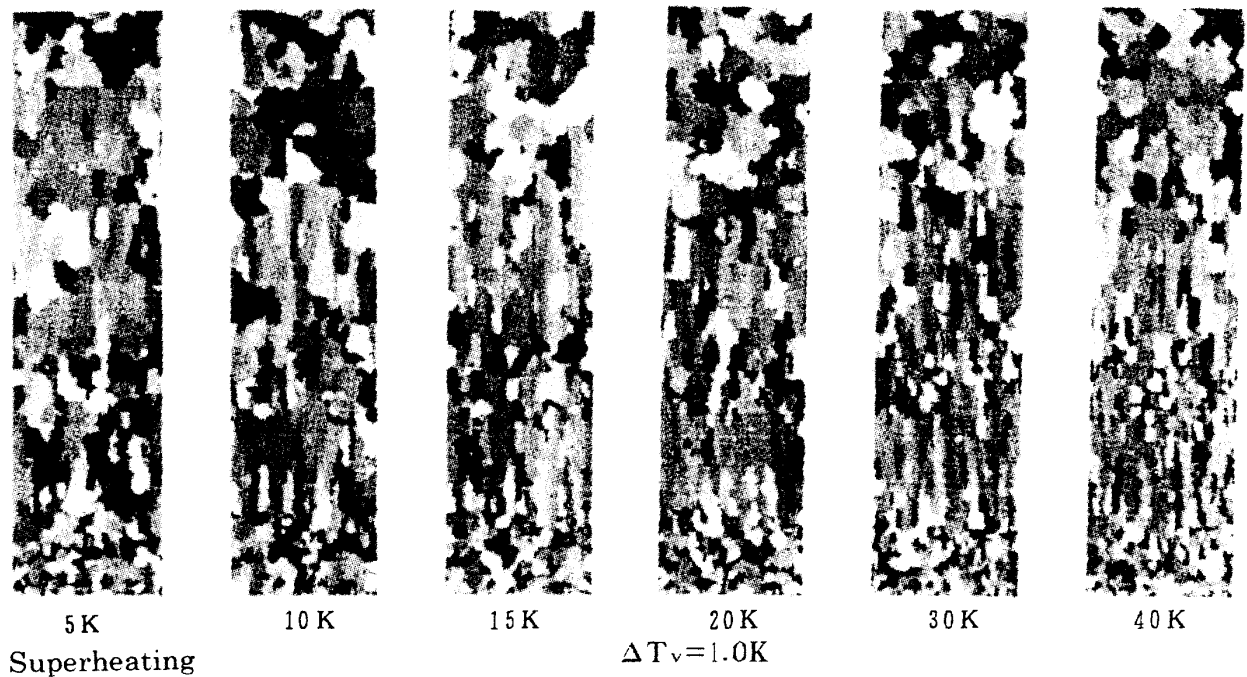


Fig. 5 Influence of melt superheating on final grain structure of continuously cast slab of low carbon steel.

2次アーム間隔, 1次結晶粒サイズに関する実験値と計算値の対応を Fig.4 に示す. ここでは凝固組織として1次結晶粒に着目し, それをデンドライト・1次アームの各方位差が5度以内のものとしてとらえた. この連成手法は, 実際の連続鋳造鋳片の2次アーム間隔, 1次結晶粒サイズをうまく再現する. ここで2次アーム間隔として, 対象とする炭素鋼に対する実測から得た経験則: $\lambda(\mu\text{m}) = 266R^{-0.26}$ (ただし $R(K/s)$: 局所冷却速度) を用いた. また Fig.5 から融液過熱度低下による等軸晶率の増大も説明できた.

5. おわりに

以上において凝固組織予測に関する研究の一端を紹介した. ここでは特に従来のこの種の論文にあまり扱われていない炭素鋼に代表される多成分系素材の凝固組織予測を念頭におき, Kobayashi[1]の考え方を基本にした凝固伝熱モデル(決定論的アプローチ)と Rappaz and Gandin[6]の考え方を基本にした組織形成モデル(確率論的アプローチ)をまず概説し, その後, それらの新たな連成を試みた. このとき組織形成と凝固条件: 融液過熱度, 外部冷却, 組成などとの関連を強調するように心掛けた.

連成手法のテクニク上の諸問題, 鋳型壁, バルク融液での核生成におよぼす諸因子の影響など, 実用炭素鋼の凝固組織予測は, まだ多くの課題を抱えている.

文献

- [1] Kobayashi, S.: Trans. Iron Steel Inst. Jpn., 28(1988), 535-542.
- [2] Brody, H.D.; Flemings, M.C.: Trans. Metall. Soc. AIME, 236(1966), 615-624.
- [3] Clyne, T.W.; Kurz, W.: Metall. Trans. A, 12A(1981), 965-971.
- [4] 大中逸雄: 鉄と鋼, 70(1984), S913.
- [5] Srolovitz, D.J.; Grest, G.S.; Anderson, M.P.: Acta Metall., 34(1986), 1833-1845.
- [6] Rappaz, M.; Gandin, Ch.-A.: Acta Metall. Mater., 41(1993), 345-360.
- [7] Hesselbarth, H.W.; Gobel, I.R.: Acta Metall., 39(1991), 2135-2143.
- [8] Gandin, Ch.-A.; Rappaz, M.; Tintillier, R.: Metall. Trans. A., 24A(1993), 467-479.
- [9] Gandin, Ch.-A.; Rappaz, M.; West, D.; Adams, B.L.: Metall. Mater. Trans. A., 26A(1995), 1543-1551.
- [10] Stefanescu, D. M.: ISIJ Int., 35(1995), 637-650.
- [11] Lee, K-Y.; Hong, C-P.: ISIJ Int., 37(1997), 38-46.
- [12] 曹 尚弦, 岡根利光, 梅田高照: 鋳造工学, 71(1999), 246-251; 252-256.
- [13] 野上敦嗣, 小関敏彦, 市川和利, 福田由佳: 溶接学会全国大会講演概要, 63(1998), 122-123; 124-125.
- [14] Kobayashi, S.; Nagamichi, T.; Gunji, K.: Trans. Iron Steel Inst. Jpn., 28(1988), 543-552.
- [15] Tiller, W.A.: The Science of Crystallization: microscopic interfacial phenomena (1991), 231-276, Cambridge University Press.
- [16] Thevoz, Ph.; Desbiolles, J.L.; Rappaz, M.: Metall. Trans. A., 20A(1989), 311-322.
- [17] Kurz, W.; Giovanola, B.; Trivedi, R.: Acta Metall., 34(1986), 823-830.
- [18] 大橋徹郎, 広本 健, 藤井博務, 塗 嘉夫, 浅野鋼一: 鉄と鋼, 62 (1976), 614-623.