

# 二次元局所曲率マルチバーテックスモデルによる 結晶粒成長シミュレーション

## Two-dimensional Grain Growth Simulation by Local Curvature Multi-vertex Model

玉 木 輝 幸\*      村 上 健 一      潮 田 浩 作  
Teruyuki TAMAKI      Kenichi MURAKAMI      Kohsaku USHIODA

### 抄 録

結晶粒成長をシミュレーションする局所曲率マルチバーテックスモデルを開発した。このモデルは、粒界の曲率と三重点の粒界張力に関する物理原理に基づいた二次元のトポロジカルネットワークモデルである。物理モデルに基づいてシミュレータを製作し、人工的な集合組織の時間発展、及び実材料の結晶粒成長での集合組織変化を実験とシミュレーションで比較して、シミュレーションの妥当性や適用可能性を検討した。その結果、結晶粒成長が古典的な曲率モデルから予測される時間の1/2乗則となること、粒界特性が結晶粒成長速度及び結晶方位差分布の変化に影響を与えること、本モデルにより実験結果を比較的良く再現できていることを確認できた。

### Abstract

A local curvature multi-vertex model was developed. This model is the straightforward two-dimensional topological network model based on the physical principles which consider the curvatures of grain boundaries and the grain boundary tensions at triple junctions. The simulator based on the physical model was developed and applied to the materials with an artificial random texture and an actual texture. As the results, the grain growth by simulation obeyed the 1/2 law of time which was derived from the classical curvature model. Moreover, the grain growth velocity and misorientation distribution was turned out to be changed by the grain boundary characteristics. The developed model was verified to simulate the experimental results quite well.

## 1. 緒 言

鉄鋼を中心とする金属材料の特性は集合組織に大きく影響される。そのため、集合組織を予測して制御することは、高品質な鉄鋼材料を造り込むために極めて重要である。集合組織の予測や制御に関する材料及びプロセスの開発は、従来冶金学的知見に基づいて行われてきた。従来の材料及びプロセスの開発からのジャンプ・アップを狙って、材料物理モデルに基づいた理想材料、理想プロセスの探求が可能なアプローチを試みた。

以前から、コンピュータ材料科学と呼ばれる、例えば材料物理分野のシミュレーションでは、分子動力学やモンテカルロ法を用いた原子スケールの格子と欠陥のダイナミックスの研究などが行われており、また機械工学分野の材料シミュレーションでは、微視的構造を組み入れた有限要素法による大規模構造問題などが行われてきた。これらの例

とは対照的に、材料科学の古典的領域、つまり集合組織などの原子スケール以上マクロスケール以下のメゾスケールのシミュレーション技術は、近年ようやく開発されつつあるところである。この特有のスケールにおけるシミュレーションは、膨大な空間と時間のスケールを取り扱うため、雑多な物理現象を適切に記述する概念、つまり物理モデルの導出が必要となる。一方、近年のコンピュータの処理能力の進歩によって、物理現象を記述するモデルを、物理イメージを損なう程極端に抽象化する概念を用いなくとも、メゾスケールのシミュレーションが可能となってきた。

そこで、我々は、金属材料の集合組織に着目して、まずは結晶粒成長を記述する物理モデルを新たに構築するところから検討を開始し、更に、その物理モデルに基づいてシミュレータを製作して、その妥当性や適用可能性について検討した。検討は、人工的な集合組織の時間発展、及び実材料の実験結果とシミュレーション結果の比較により、

\* 広畑技術研究部 主幹研究員 兵庫県姫路市広畑区富士町1 ㊦671-1188

行った。

## 2. 結晶粒成長モデル

### 2.1 従来のモデル

結晶粒成長を記述するモデルとして種々のモデルが提案されている。その一つである統計論的手法は、例えば製鉄プロセスでの方向性電磁鋼板の選択成長のメカニズムを理解するのに用いられている<sup>1)</sup>。以前は膨大な数のマトリックス粒の中から巨大な結晶粒に成長する極少数の微小結晶粒を同定することは困難であったという点からこの手法は有用であるが、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について個別結晶粒ごとに検討できないという課題がある。近年、後方散乱電子回析 (electron backscatter diffraction : EBSD) 技術の劇的な進展によって<sup>2)</sup>、集合組織の直接観察が簡単に行えるようになり、巨大結晶粒に成長する微小結晶粒の同定が比較的容易になってきたことから、EBSD観察データを十分に活用できる手法の開発が望まれている。

このような手法として、確率論的手法 (モンテカルロ法)<sup>3)</sup>やフェーズフィールド法<sup>4)</sup>、トポロジカルネットワークモデル (フロントトラッキングモデル)<sup>5,6)</sup>、バーテックスモデル<sup>7-10)</sup>が、結晶粒成長を記述するモデルとして既に提唱され開発されている。これらの手法またはモデルは、いずれも集合組織のモフォロジーを取り扱っている点では優れており、ある限られた条件においては結晶粒成長の記述に成功している。

確率論的手法では、粒界特性とピン止めが数学的に取り扱われている。そのため、異常粒成長を、物理的イメージをもって十分に表現できていないという課題がある。

フェーズフィールド法も結晶粒成長モデルに適用されているが、この手法の性質上、粒界を有限の幅で表現する必要があり、粒界がぼやけているという課題がある。そのため、多くの微小結晶粒が存在する結晶成長の初期段階では、計算精度が必ずしも十分とは言えない。また、例えば三重点での新たな物理原理を導入することは容易なことではない。

トポロジカルネットワークモデルでは粒界は曲線で近似される。粒界はフェーズフィールド法のようなぼやけた粒界ではなく、はっきりとした粒界である。2つの三重点の間の曲線上にはいくつかの仮想点 (二重点) が配置され、これによって粒界の局所曲率を計算することが可能となる。局所的な粒界、つまり粒界上の仮想点は速度ベクトル  $\vec{v}_{gb,i}$  で移動する。

$$\vec{v}_{gb,i} = m_{gb,i} \gamma_i \vec{\kappa}_i \quad (1)$$

ここで、 $m_{gb,i}$  は粒界易動度、 $\gamma_i$  は二次元では単位長さあたりの粒界エネルギー、 $\vec{\kappa}_i$  は仮想点  $i$  での粒界の局所曲率である。一方、三重点は、粒界エネルギーによる粒界張力

が平衡となる角度で粒界が交わるように、三重点付近の粒界つまり仮想点の位置が数学的に調整される<sup>9)</sup>。例えば、3つの粒界エネルギーが等しい場合には、交差角度は120°に調整される。

初期のバーテックスモデルでは、粒界は常に直線で近似される<sup>7,8)</sup>。このモデルでは、結晶粒成長のための駆動力は、三重点に作用する粒界張力である。三重点は速度ベクトル  $\vec{v}_{triple,i}$  で移動する。

$$\vec{v}_{triple,i} = m_{triple,i} \cdot \sum_{j=1}^3 \gamma_{ij} \frac{\vec{r}_{ij}}{\|\vec{r}_{ij}\|} \quad (2)$$

ここで、 $m_{triple,i}$  は三重点  $i$  の易動度、 $\gamma_{ij}$  は三重点  $i$  と三重点  $j$  の間の粒界の単位長さあたりの粒界エネルギー、 $\vec{r}_{ij}$  は三重点  $i$  から三重点  $j$  へのベクトルである<sup>7)</sup>。単位長さあたりのエネルギーは張力と同じ単位で表わされる。したがって、式 (2) の  $\gamma_{ij} \cdot \vec{r}_{ij} / \|\vec{r}_{ij}\|$  は三重点に作用する張力であり、三重点の移動は物理的に正確に記述されている。しかし、通常曲線である粒界を直線で近似している点に問題がある。

この初期のバーテックスモデルは、粒界上に仮想点を配置することによって改善された<sup>9,10)</sup>。この改善によって粒界は折れ線で近似される。それぞれの仮想点の運動は、粘性項または摩擦項を含むニュートン方程式に基づく変分原理で記述される。この改善されたバーテックスモデルは物理原理に基づいているので、結晶粒成長を記述するのに適していると考えられる。しかしながら、粒界を曲線ではなく折れ線で近似しているために、粒界上の仮想点が少ない場合には大きな誤差を生じる。例えば、孤立した  $n$  角形の収縮では、改善バーテックスモデルで記述された仮想点の移動速度は、トポロジカルネットワークモデルの曲率から計算される移動速度の約  $1 / \cos(\pi/n)^2$  倍速い<sup>9)</sup>。 $n \rightarrow \infty$  の極限において両者は等しくなるものの、 $n = 10$  の場合約11%の誤差を生じる。

そこで、このような問題を解決でき、物理原理を直接的に表現した、二次元のトポロジカルネットワークモデルを提案する。

## 2.2 提案モデル —局所曲率マルチバーテックスモデル—

### 2.2.1 粒界移動の原理

結晶粒成長を二次元でより正確且つ直接的にモデル化するために、Frost<sup>5)</sup>及びFuchizaki<sup>9)</sup>の方法と同様の方法を用いて2つのタイプの点を取り入れる。1つは三重点で、これは実在点である。もう1つは粒界上の点で、これは粒界を離散化するための仮想点である。この方法によって、線で表わされる粒界の移動は点の移動に変換されることになる。仮想点は隣接する2つの点と繋がれるので、二重点になる。一方実在点は隣接する3つの点と繋がれるので三重点になる。仮想点及び実在点の移動はそれぞれ式 (1) 及

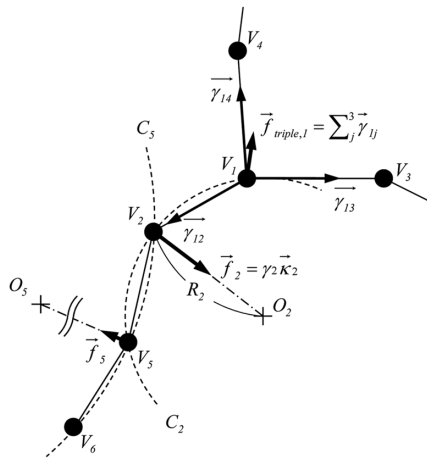


図1 局所曲率マルチバーテックスモデル

$\vec{f}_i$  及び  $\vec{f}_{triple,j}$  はそれぞれ仮想点(二重点)  $i$  と実在点(三重点)  $j$  の駆動力である。 $V_i$  は点  $i$  を、 $C_i$  は  $V_i$  とその両側に隣接する点の3つの点で決定される円弧を、 $O_i$  は円弧  $C_i$  の中心を、 $R_i$  は円弧  $C_i$  の半径を、 $\vec{\gamma}_{ij}$  は  $\vec{\gamma}_{ij} = \gamma_{ij} \cdot \vec{r}_{ij} / \|\vec{r}_{ij}\|$  で定義される粒界エネルギーベクトルを、 $\gamma_{ij}$  は点  $i$  と点  $j$  間の粒界の単位長さあたりの粒界エネルギーを、 $\vec{r}_{ij}$  は点  $i$  から点  $j$  へのベクトルを表す。

Local curvature multi-vertex model

$\vec{f}_i$  and  $\vec{f}_{triple,j}$  are the driving forces of virtual vertex  $i$  and triple junction  $j$  respectively in this model.  $V_i$  is the vertex  $i$ .  $C_i$  is circle arc determined by the vertex  $V_i$  and nearest neighbors in both sides.  $O_i$  is the center of circle arc  $C_i$ .  $R_i$  is the radius of circle arc  $C_i$ .  $\vec{\gamma}_{ij}$  is the grain boundary energy vector defined by  $\vec{\gamma}_{ij} = \gamma_{ij} \cdot \vec{r}_{ij} / \|\vec{r}_{ij}\|$ .  $\gamma_{ij}$  is the energy per unit length of the grain boundary between the vertices  $i$  and  $j$ .  $\vec{r}_{ij}$  is the vector connecting vertex  $i$  with vertex  $j$ .

び式 (2) に従う。このとき局所曲率ベクトル  $\vec{\kappa}_i$  は次式で計算される。

$$\|\vec{\kappa}_i\| = 1 / R_i \tag{3}$$

ここで、 $R_i$  は点  $i$  と両側に隣接する点の3つの点で決定される円の半径である。局所曲率ベクトル  $\vec{\kappa}_i$  の方向は、図1に示されるように、点  $i$  から円弧の中心へ向かう方向となる。このモデルは局所曲率マルチバーテックスモデルと呼ぶことができる。一般に、隣接する2つの円弧は一致しない。集合組織構造を描く際に便宜上2つの点を直線で繋ぐが、局所曲率計算方法と描かれた線とは異なる。

2.2.2 モデルの妥当性検証

モデルの正当性を確認するために、孤立した閉じた円状の粒界の収縮について検討した。古典的な曲率モデルによって、円の収縮は、 $dr/dt = m_{bg} \gamma / r$  で記述することができる。ここで、 $r$  は円の半径、 $m_{bg}$  は粒界易動度、 $\gamma$  は単位長さあたりの粒界エネルギーである。提案した局所曲率モデルにおける円の収縮速度は、上記の曲率モデルにおける収縮速度と全く同じとなる。但し、円弧上の仮想点の数が3以上である必要がある。

2.2.3 トポロジー変換

結晶粒成長の時間発展の過程で、トポロジー変換が要求される。Weygandらがバーテックスモデルにおいて既に提案しているトポロジー変換があるので、我々の提案モデルにおいてもその変換を用いることにする<sup>10)</sup>。

2.2.4 粒界エネルギーと粒界易動度

粒界エネルギー及び粒界易動度は、粒界で接する2つの結晶粒の方位差に依存する。対応粒界の結晶方位差付近の角度での粒界エネルギー  $\gamma$  及び粒界易動度  $m$  は、最小値が0の場合、次式で表わされる<sup>11)</sup>。

$$\gamma = \gamma_m \frac{|\theta - \theta_0|}{\theta_m} \left( 1 - \ln \frac{|\theta - \theta_0|}{\theta_m} \right) \tag{4}$$

$$m = m_m \left[ 1 - e^{-B \left( \frac{|\theta - \theta_0|}{\theta_m} \right)^n} \right] \tag{5}$$

ここで、 $\gamma_m$  及び  $m_m$  は対応粒界の結晶方位差付近以外の大角粒界での粒界エネルギー及び粒界易動度の最大値で、 $\theta$  は結晶方位差、 $\theta_0$  は粒界エネルギー及び粒界易動度が極小値となる対応粒界の結晶方位差で、 $\theta_m$  は粒界エネルギー及び粒界易動度が最大値とならない角度範囲、 $n$  と  $B$  はパラメータである。 $n$  及び  $B$  はそれぞれ  $n=4$  及び  $B=5$  とした。式 (4) は Read-Shockley の関係である。 $\theta_m$  は Brandon の偏差角  $\theta_m(\Sigma) = (\pi/12) / \sqrt{\Sigma}$  で決まる。ここで、 $\Sigma$  は対応粒界の次数である<sup>12)</sup>。

3. 人工的な集合組織の時間発展

3.1 計算データ及び計算条件

提案した結晶粒成長モデルを、3種類の粒界特性条件の下で、方位がランダムな初期の結晶粒がすべて四角形の人工的な集合組織の結晶粒成長シミュレーションに適用した。条件(A)では、粒界エネルギーおよび粒界易動度は結晶方位差に依存せず一定とした。条件(B)及び条件(C)では、 $\Sigma 1$  及び  $60^\circ$  付近の大角粒界を考慮した。大角粒界の粒界エネルギー及び粒界易動度の最小値は最大値の30%とし、角度範囲は条件(B)では  $15^\circ$ 、条件(C)では  $25^\circ$  とした。

結晶粒方位差に対する粒界エネルギー及び粒界易動度を図2に示す。図2には、シミュレーションに用いた結晶粒組織も示しており、シミュレーション領域は  $210 \mu\text{m} \times 216 \mu\text{m}$  で、その中に約  $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$  の5040個の四角形が配置されたものである。初期の結晶粒の形状を四角形としているのは、データを作製するのが簡単であるからである。四重点は2つの三重点に分割しなければならないので、四角形はわざと正方形としていない。四重点の分割は、三重点のトポロジー変換<sup>10)</sup>から類推される規則にしたがって行うことができる。それぞれの結晶粒のEuler角はランダムに与えた。図2に示すように、初期状態では結晶方位差分布がMackenzie分布になっており、Euler角が正しくラン

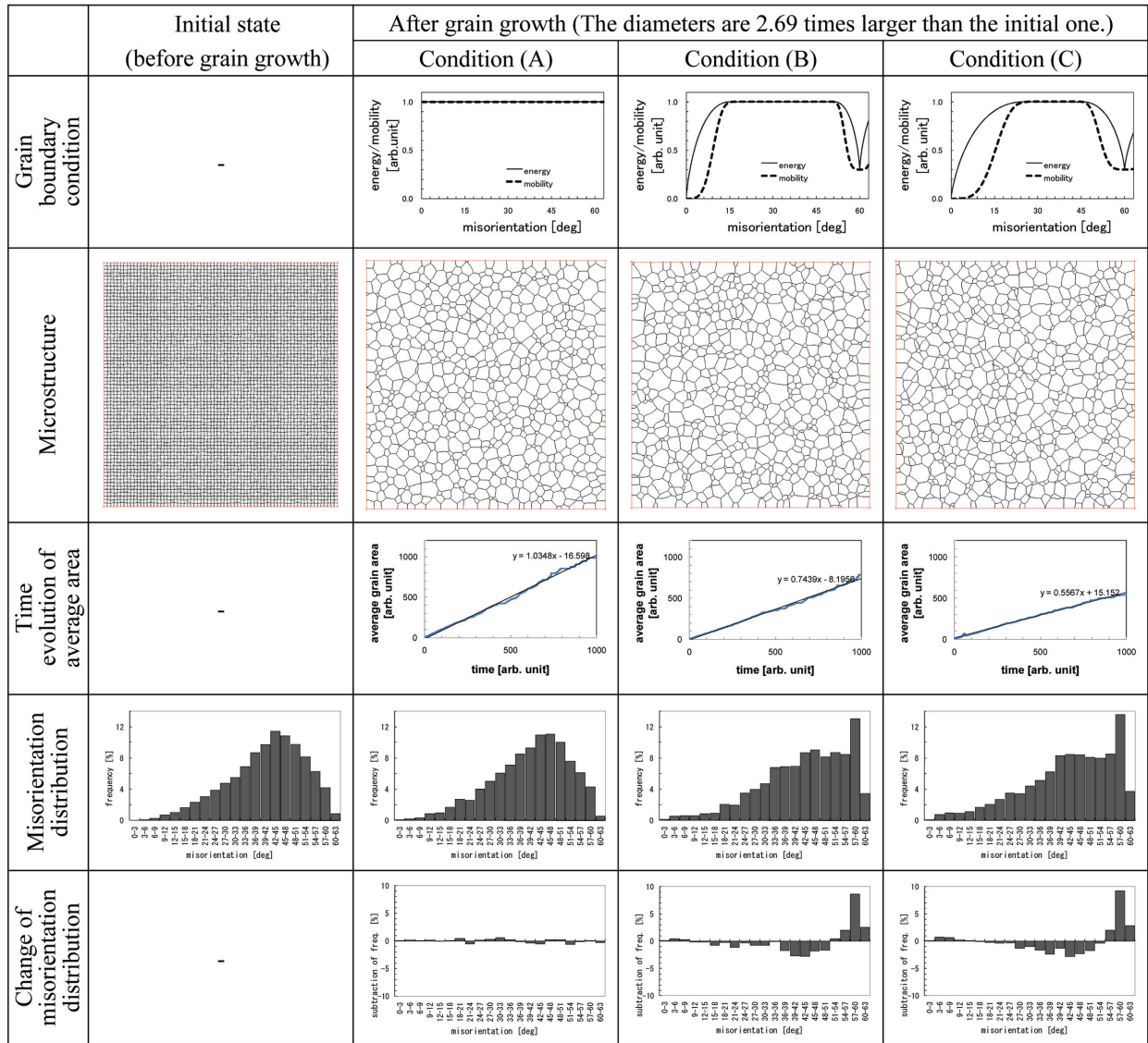


図2 各粒界条件の結晶粒成長シミュレーション条件と結果

条件(A):粒界特性一定。条件(B):Σ1粒界及び60°付近の大角粒界を考慮。考慮角度範囲は15°。条件(C):Σ1粒界及び60°付近の高角粒界を考慮。考慮角度範囲は25°。

Conditions and results of grain growth simulation on each grain boundary

Condition (A): Constant boundary characteristics. Condition (B): Σ1 boundary and high angle grain boundaries close to 60° are taken into account. The angle range is 15°. Condition (C): Σ1 boundary and high angle grain boundaries close to 60° are taken into account. The angle range is 25°.

ダムに与えられていると言える<sup>13)</sup>。

### 3.2 結果と考察

#### 3.2.1 平均結晶粒面積の時間発展

提案モデルを用いたシミュレーションの結果、図2に示す通り、平均結晶粒面積つまり平均結晶粒径の二乗は時間に比例することが確認できた。粒界をピン止めするインヒビターがない状態、つまり正常粒成長において曲率モデルで期待される結果と同様の結果が得られた。粒界の移動を示す式(1)から、比例係数つまり結晶粒成長速度は、粒界易動度と粒界エネルギーの積に関連付けられると考えら

れる。シミュレーション結果から、平均結晶粒面積の時間発展の係数の各条件に対する比率は、(A):(B):(C) = 1.00:0.72:0.54であった。一方、結晶方位差分布を重みとした粒界易動度と粒界エネルギーの積の平均値の二乗の比は、(A):(B):(C) = 1.00:0.85:0.67であった。シミュレーションにおける結晶粒の成長速度は、粒界特性でおおよそ予測できるが、その予測より更に大きいと言える。このことは、3.2.2に示す結果が理由と考えられる。

#### 3.2.2 結晶方位差に対する粒界長さ分布

粒界特性が一定の条件(A)では、結晶方位差に対する

粒界長さ分布はほとんど変化していないのに対して、粒界特性が結晶方位差に対して変化する条件 (B) 及び (C) では、結晶方位差に対する粒界長さ分布は条件 (A) に比べ非常に大きく変化している (図2)。粒界易動度及び粒界エネルギーが小さくなることで、粒界長さ頻度の変化は増大しており、一方、それ以外のところでは、粒界長さ頻度の変化は減少している。また、条件 (B) と (C) の粒界長さ頻度の変化の違いは小さいが、粒界特性が変化する角度範囲が広がると、特に小さな結晶方位差である  $\Sigma 1$  付近の粒界長さ頻度が大きく変化した。したがって、角度範囲も結晶方位差に対する粒界長さ頻度の変化に影響を与えていると言える。この粒界長さ頻度の変化は、結晶粒の成長速度にも影響を与えていると考えられる。

#### 4. 実材料の実験結果とシミュレーション結果の比較

##### 4.1 実験条件及び計算条件

真空溶解で Si 0.5%, Mn 0.5% を含有する鋼塊を作製し、1150℃にて1時間焼鈍の後、厚さ2.3mmの熱間圧延板を作製した。続いて冷間圧延にて0.5mm厚さとした後、730℃にて30秒の焼鈍を実施し再結晶を完了させ、この試料を初期状態とした。さらに本試料を、730, 780, 830℃の3条件にてそれぞれ30秒の焼鈍を実施し、粒成長後の状態とした。

EBSDF観察は板厚中心層のND面にて実施した。集合組織は、①全体集合組織 (試料サイズ幅12×長さ10mm<sup>2</sup>全体を1000点手動測定でデータ採取)、②局所集合組織 (粒成長シミュレーション用の方位マッピング幅600×長さ1800  $\mu\text{m}^2$ , 3  $\mu\text{m}$  ステップ) の2種類を測定した。このとき、粒成長の計算に用いた初期組織は、初期状態試料の上記②の方位マップデータ (点要素) から線要素に変換したものをを用いた。粒界エネルギーと易動度の式については従来知見<sup>11)</sup>を参考に、 $\Sigma 1$  粒界 ( $\theta_0 = 0^\circ$ ,  $\theta_m = 15^\circ$ ) 及び大角粒界 ( $\theta_0 = 60^\circ$ ,  $\theta_m = 8.7^\circ$ ) のみを考慮した条件 (B) とした。

##### 4.2 結果と考察

780℃, 30秒後の粒成長後の実験結果及びシミュレーション結果を図3~5に示す。粒成長後の方位差角度分布に関しては、シミュレーションと実験結果は比較的良好一致した (図3)。結晶粒度分布に関しては粒径が小さい場合を除いて比較的良好一致は良好であった (図4)。集合組織変化に関しては、実験結果では粒成長に伴い {111} // ND 方位が強くなったが、シミュレーションでは傾向は同一であったものの、その変化の程度についてはそれほど大きくなかった (図5)。

以上より、本モデルでは実験結果を比較的良好にシミュレートできていると言える。実験とシミュレーションの差

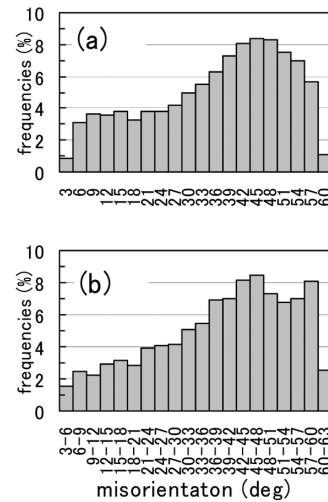


図3 結晶粒成長後の結晶方位差分布  
(a) 実験結果 (b) 計算結果  
Misorientation distributions after grain growth  
(a) Experiment (b) Simulation

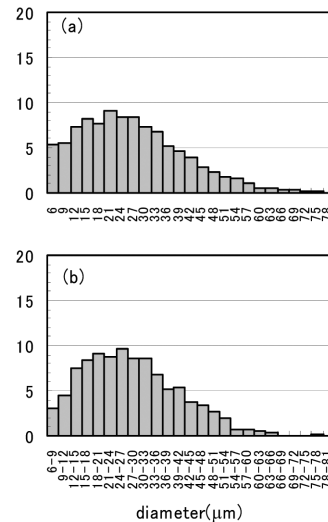


図4 結晶成長後の結晶粒サイズ分布  
(a) 実験結果 (b) 計算結果  
Grain size distributions after grain growth  
(a) Experiment (b) Simulation

異については、二次元での粒成長モデルであること、及び、粒界性格の前提が異なるためと推察される。

## 5. 結 言

結晶粒成長をシミュレーションする局所曲率マルチバーテックスモデルを開発した。このモデルは、粒界の曲率と三重点の粒界張力に関する物理原理を直接的に表現した、二次元のトポロジカルネットワークモデルである。

人工的な集合組織の時間発展、及び実材料の実験結果とシミュレーション結果の比較により、開発したモデルの妥当性及適用可能性を示した。具体的には、結晶粒成長が古

