

鉄鋼材料のメソスケール組織予測技術

Mesoscale Simulation Technology for Estimation of Complex Microstructure Evolution in Steels

西田 靖孝

佐野 光彦

小原 一浩

■ NISHIDA Yasutaka

■ SANO Mitsuhiko

■ OHARA Kazuhiro

原子サイズよりは大きいが目に見える巨視的サイズよりは小さい、メソスケールの結晶粒から成る鉄鋼材料（以下、鋼材と略記）の内部組織を予測する技術を開発した。

この技術は、熱力学データベースから得られる基礎的な物性値に基づいて、鋼材の内部組織形成過程を予測するものであり、鋼材ユーザーの要求に適合するように材質特性をきめ細かく作り分けられるための、熱間圧延材質予測技術に応用できると期待される。

A mesoscale simulation technology to estimate the microstructure of steels consisting of multiphase mesoscale grains, whose size is larger than the atomic scale and smaller than the macroscopic scale, has been developed.

This mesoscale simulation technology incorporating numerical simulation techniques makes it possible to estimate the microstructure formation process in carbon steels based on fundamental material data available from the thermodynamic database, and is expected to be applied to the analysis of material properties of steels under hot rolling processes in order to precisely manufacture products meeting users' requirements.

1 まえがき

鋼材は、車両や船舶などの運輸機械、及びビルや橋などの建設物といった幅広い用途に利用されており、その強度や、成形性、溶接性など材質特性のいっそうの向上が望まれている。これら材質特性は、顕微鏡レベルのサイズの金属組織と密接に関係していることが知られている。

鋼材には、加熱や冷却をする際に固体のままに結晶構造が変化し、相変態と呼ばれる現象が生じるという特徴がある。したがって、加工及び温度条件を操作し、相変態の発生と、結晶粒の成長をコントロールすることで、鋼材の金属組織を様々に変化させることができ、用途に合わせた材質特性を持つ鋼材を作り分けることができる。

熱間圧延は、加熱した鋼材をロールで変形させ板材などに加工する工程で、鋼材の材質を左右する重要な工程の一つである。近年、熱間圧延を対象とする材質予測システムが実用化されている。このシステムは、鋼材の材質特性を表す材質モデルにより、化学成分並びに加工及び温度の条件を与えると、どのような材質特性が得られるかを予測するもので、所望の材質特性を得るための最適な条件を検討するために利用されている。

従来、適正な条件を確立するためには、試圧延を繰り返す必要があり、膨大な費用と手間が掛かっていた。これに対し、材質予測システム⁽¹⁾を用いると、試圧延の繰返しを最小化することができるだけでなく、鋼材ユーザーの要求に適合するように材質特性をきめ細かく作り分けられる利点もあり、生産現

場で活用され始めている。

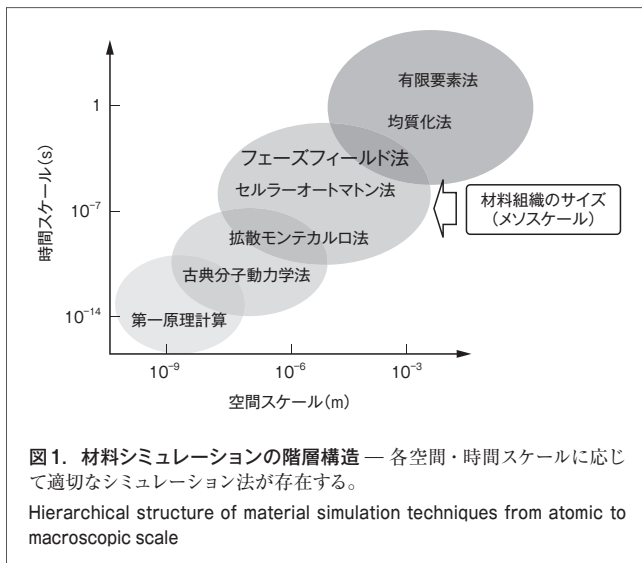
そこで、材質予測システムで用いる材質モデルの精度向上と、様々な鋼種や圧延条件への適用範囲拡大を図るため、“マルチフェーズフィールド法”による金属組織形成のシミュレーション技術を新たに開発した。

ここでは、開発したマルチフェーズフィールド法と、その計算事例⁽²⁾について述べる。

2 メソスケール組織予測技術

鋼材の金属組織は、顕微鏡レベルの原子サイズから見ると、純鉄に炭素がわずかに固溶した結晶の集合体であり、様々な結晶方位を持つ結晶粒から成る多結晶体である。金属組織の結晶粒のサイズは、数 μm ～数十 μm 程度であり、これは原子のミクロなサイズからすると十分大きい目に見えるマクロなサイズからすると十分小さいサイズである。このようなミクロでもなくマクロでもないスケールは、しばしば、メソ（中間）スケールと呼ばれ、鋼材の材質特性は、このメソスケールで特徴づけられる金属組織に大きく依存していることが知られている。したがって、材料開発に要する試作や費用の負担を低減するための材質予測システムには、製造プロセスと金属組織の関係を予測するメソスケール組織予測技術が有効と考えられる。

空間スケールと対応するシミュレーション技術の一般的な階層構造を図1に示す。材料シミュレーション技術は、原子レベルのミクロなスケールから古典力学が支配的なマクロなスケールまで広範囲に及んでおり、各々のスケールで有効な技術が知



られている。例えば、原子・分子サイズでは第一原理計算や分子動力学法が、また巨視的な領域では有限要素法と呼ばれる技術が代表的に確立されており、汎用的なツールが広く用いられている。ところが、メソスケールの領域では、前述のスケール領域と異なり確固とした有効な技術はなく、モンテカルロ法やセルラーオートマトンなどの確率論に基づいた方法でアプローチがなされてきた。この背景には、メソスケールでは、ミクロスケールに比べ原子数が膨大なため、第一原理計算などでアプローチするには計算コストの面で困難であるという事情が、またマクロスケールからのアプローチは、よりミクロなスケールであるメソスケールの諸現象に基本的に適用できないという事情がある。

そこで、メソスケールでのシミュレーション技術に、凝固分野においてデンドライト成長のシミュレーション⁽³⁾で成功を取めたフェーズフィールド法を採用した。これは、系の状態を特徴づける秩序変数と呼ばれる変数を導入し、この秩序変数の時間発展によって系全体のふるまいを捉える手法である。これにより、材料組織のふるまいについて、組織を構成する原子一つひとつのふるまいをあらわに扱うことなく、簡便かつ高速にシミュレーションできる。また、熱力学データベースから得られる基礎的な物性データと連携することで、状態図上の相変態に即した組織形成過程をシミュレーションできる。

3 マルチフェーズフィールド法

鋼材のような多結晶組織の場合、同じ相に属する結晶粒を結晶方位などの違いによって区別できるように拡張した、マルチフェーズフィールド法^{(4), (5)}が有効である。以下、開発したシミュレーション技術の基礎となるマルチフェーズフィールド法について概説する。

マルチフェーズフィールド法は、凝固現象を記述する通常の

フェーズフィールド法を多結晶の場合に拡張する。ここで、 N 個の粒子を含む多結晶系を考え、ある相に属する i ($= 1, 2, 3 \dots, N$)番目の結晶粒を見いだす確率を秩序変数 $\phi_i(\mathbf{r}, t)$ と定義する。このとき ϕ_i は、座標 \mathbf{r} と時間 t の関数であり、各粒の粒界を境に値が0から1へ滑らかに変化する関数と定義される。スタインバッハ氏らによって提案された方法^{(4), (5)}では、系のギブス自由エネルギー G_{sys} は ϕ_i と鋼材中に含まれる炭素やマンガンの溶質組成 $c(\mathbf{r}, t)$ の汎関数によって与えられる。

$$G_{\text{sys}} = \int_{\Omega} \left\{ f^{\text{int}}(\phi_i, \nabla\phi_i) + f^{\text{chem}}(\phi_i, c) \right\} d\Omega \quad (1)$$

$$f^{\text{int}}(\phi_i, \nabla\phi_i) = \sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N \left\{ -\frac{\varepsilon_{ij}^2}{2} \nabla\phi_i \cdot \nabla\phi_j + W_{ij} \phi_i \phi_j \right\} \quad (2)$$

$$f^{\text{chem}}(\phi_i, c) = \sum_{i=1}^N \left\{ p(\phi_i) g_i(c, T) \right\} \quad (3)$$

ここで、式(1)の f^{int} は、勾配エネルギー密度と粒子間の障壁エネルギーから成る自由エネルギー密度で、 f^{chem} は化学的自由エネルギー密度である。式(2)内の係数について、 ε_{ij} は勾配係数、 W_{ij} は結晶粒 i と j の間の障壁ポテンシャル、式(3)内の g_i は結晶粒 i に対するギブス自由エネルギーと定義され、 Ω は系全体の空間領域である。関数 $p(\phi_i)$ は、 $p(\phi_i = 0) = 0$ 、 $p(\phi_i = 1) = 1$ となる連続単調増加関数と定義される。 ϕ_i は、熱力学第2法則により、 G_{sys} が常に減少する方向に時間発展する。 ϕ_i の時間変化が G_{sys} の ϕ_i に関する変分に比例係数 M で比例すると、 ϕ_i は以下の自由エネルギーの変分方程式(マルチフェーズフィールド方程式)に従う。

$$\frac{\partial\phi_i(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \sum_{i=1}^n \frac{M}{n} \left[\frac{\delta G_{\text{sys}}}{\delta\phi_i} - \frac{\delta G_{\text{sys}}}{\delta\phi_j} \right] \quad (4)$$

$$n = \sum_{j=1}^n s_j \quad (5)$$

ここで、 n は局所的に共存する相の数であり、 s_j は $0 < \phi_j \leq 1$ を満たすときに1で、それ以外は0の値をとる階段関数である。 $\phi_i(\mathbf{r}, t)$ は、空間座標に依存しているため、式(4)は、ある相に属する結晶粒の存在確率を与える“場”(“相の場”:フェーズフィールド)の時間発展方程式と見ることができる。また、式(4)の $\phi_i(\mathbf{r}, t)$ は、自由エネルギー関数に従って増加若しくは減少するだけで、時間変化に対して保存されない。したがって、式(4)は安定な相の結晶粒が成長する、あるいは不安定な相の結晶粒が消失するふるまいを表している。系の $c(\mathbf{r}, t)$ の時間発展については、溶質の拡散方程式によって与えられる。溶質の固溶濃度は、一般に相によって異なるため、系の溶質の濃度分布は、系に存在する相の組織分布に依存する。相の組織分布は式(4)の $\phi_i(\mathbf{r}, t)$ によって与えられるため、溶質の拡散方程式は $\phi_i(\mathbf{r}, t)$ を用いて以下のように表すことができる。

$$c(\mathbf{r}, t) = \sum_{i=1}^N \phi_i c_i \quad (6)$$

$$\frac{\partial c(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \nabla \cdot \left[\sum_{i=1}^N \phi_i D_i \nabla c_i \right] \quad (7)$$

ここで、 $c_i(\mathbf{r}, t)$ は各粒が属する相の溶質の固溶濃度、 D_i は各粒が属する相の炭素の拡散係数である。式(7)の $c(\mathbf{r}, t)$ は、式(4)の対応でみると、溶質濃度場であり、溶質の総量は時間発展に対して保存される。これは外から溶質の出入りがなかり、溶質の全体量が常に保存されることから明らかである。

鋼材では熱間圧延後の冷却過程において、拡散を伴う拡散相変態や拡散を伴わない構造相転移（マルテンサイト変態など）が起きる。代表的な例として、高温で徐冷を行った場合、安定なオーステナイト（ γ ）相から低温で安定なフェライト（ α ）相が析出する γ - α 相変態が挙げられる。 γ - α 相変態では、 α 相の炭素固溶限界濃度が γ 相のそれよりも小さいため、 α 相の粒成長とともに α 相内で固溶しきれない炭素が拡散し、 α 結晶粒の成長に影響を与える。これは、式(4)と式(7)を連立させることで解析できる。

以下に、この技術を用いた解析例を示す。

4 鋼材の γ - α 相変態シミュレーション

開発したシミュレーション技術を用いた γ - α 相変態のシミュレーション結果について述べる。炭素濃度 0.05 wt% の鉄-炭素 2 元系の鋼材に対し、冷却速度 3 °C/s で降温した場合の時間発展を図 2 に示す。時間の経過とともに、母相の γ 相から新相の α 結晶粒が成長してゆき、結晶粒どうしが衝突するようになる、粒成長が抑えられるようすが見られる。このときの

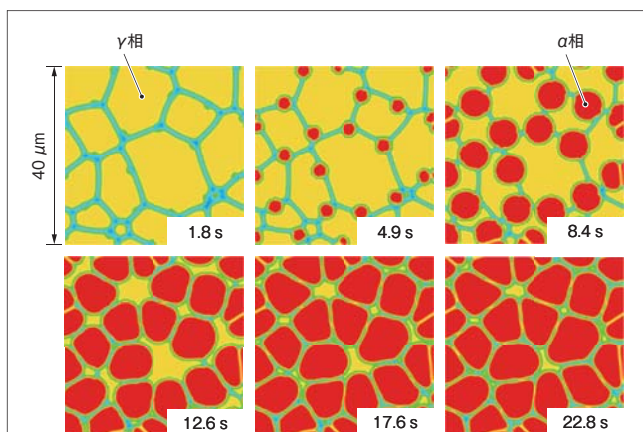
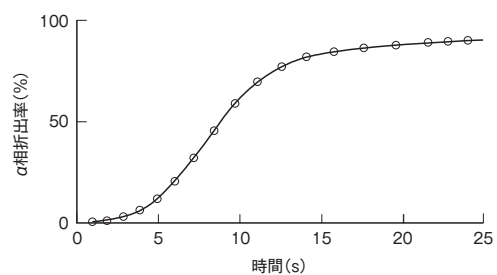


図 2. 連続冷却過程中の γ - α 相変態シミュレーション — 炭素濃度 0.05 wt%、冷却速度 3 °C/s の条件で、 α 相が時間の経過とともに γ 相から析出し、粒成長する。

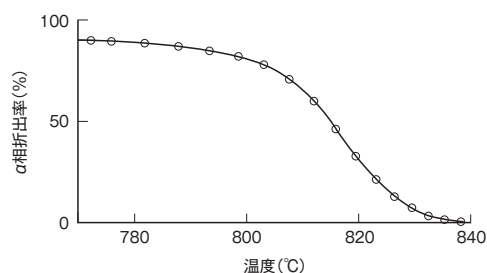
Results of simulation of γ -to- α phase transformation during continuous cooling process

α 相析出率の時間変化と温度変化を図 3 に示す。約 800 °C 付近（冷却から約 15 s 後）から α 相析出率の上昇が飽和し始め、析出率の増加が抑えられているようすが見られる。

図 2 のシミュレーションにおいて冷却開始から 8.4 s 後の炭素濃度分布を図 4 に示す。(b) は $x=0$ と $x=24 \mu\text{m}$ の位置での y 方向の濃度分布である。炭素濃度は γ/α 界面で濃化しているようすが見られる。これは、 α 相が γ 相より炭素の固溶限界濃度が小さく、また、 α 相中の炭素の拡散速度は γ 相中のそれよりも大きいため、 α 結晶粒の粒成長とともに、 α 相内に固溶しき



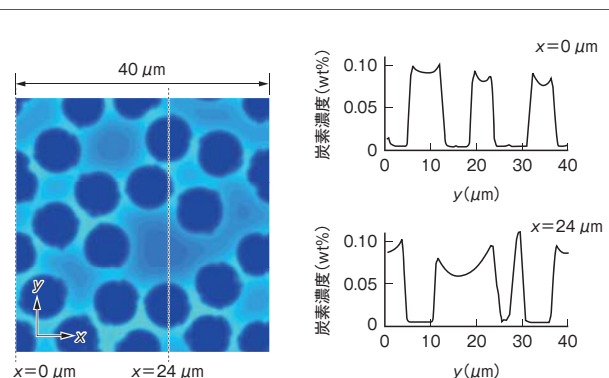
(a) 時間変化



(b) 温度変化

図 3. α 相析出率の時間変化と温度変化 — 時間の経過あるいは温度の降下とともに α 相析出率が増大し、15 s 付近で増大率が飽和し始める。

Time and temperature dependence of α -phase fraction during continuous cooling process



(a) xy 平面の炭素濃度分布

(b) y 方向の炭素濃度分布

図 4. 図 2 における 8.4 s 後の炭素濃度分布 — γ/α 界面で炭素濃度の濃化が見られる。

Distribution of carbon concentration shown in Fig. 2 after 8.4 seconds

れない炭素が γ/a 界面に掃き出されていることを示している。

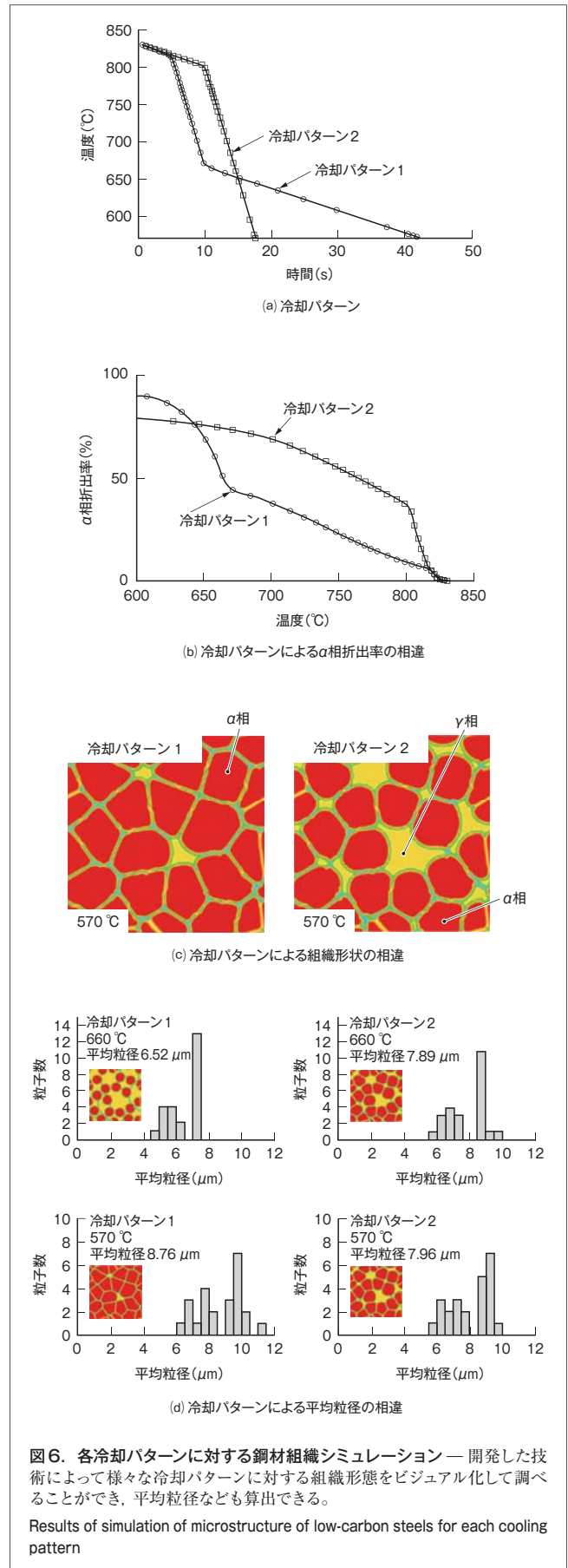
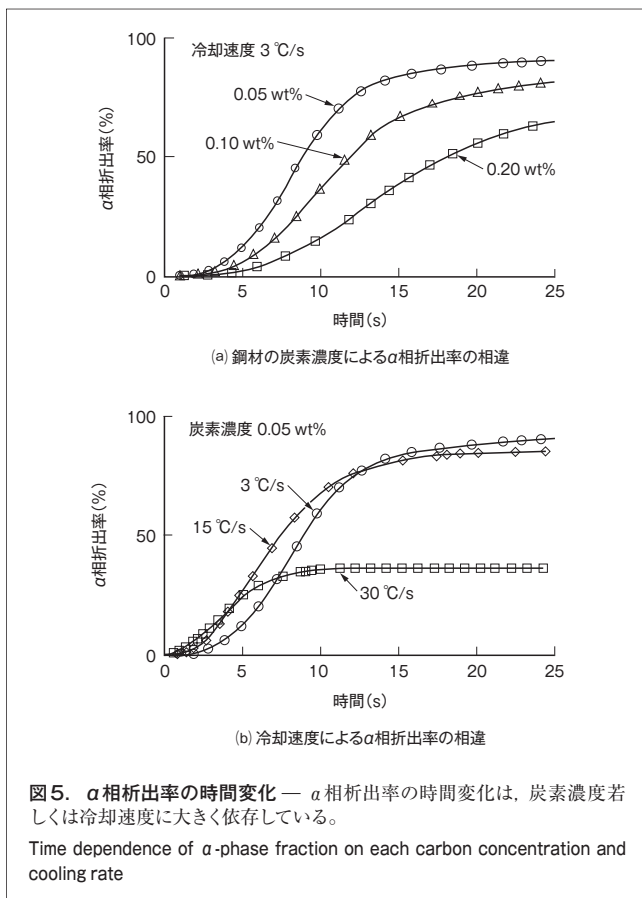
このようにマルチフェーズフィールド法を基礎に置いたこの技術を用いると、溶質の拡散が絡む安定相の成長のふるまいをビジュアル化して把握できる。また、式(1)~(7)に含まれるパラメータや自由エネルギー関数は、熱力学データベースから得られる基礎的な物性値をそのまま利用できるため、実験データや公知のデータベースを活用すれば、定量的なシミュレーションも行うことができる。

5 プロセスシミュレーションとしての活用

この技術は、ある参照実験に対し、実機条件を変更したときの相変態過程を予測する、プロセスシミュレーションとしても利用できる。

図2の計算条件を参照結果として、鋼材の炭素濃度を变化させた場合(a)と、冷却速度を变化させた場合(b)の結果を図5に示す。炭素濃度を变化させた場合、 α 相析出率は炭素濃度の増大に伴って減少するようすがわかる。この粒成長の抑制は、 γ/a 界面での炭素濃度の濃化程度の増大によるもの(拡散律速)と考えられる。

一方、冷却速度を变化させた場合、 α 相析出率の飽和値は、冷却速度が大きくなるにつれ、小さくなる傾向が見られる。



しかし、冷却開始から数秒の間は、冷却速度の大きい30℃/sの場合の α 相析出率のほうが、冷却速度3℃/sの場合よりも大きい。これは、急冷の場合、過冷却が大きくなるため、冷却初期には核生成頻度が高く、 α 相析出率が徐冷時より大きくなるが、一方で、温度の急激な低下により炭素拡散も抑制されるため、急速に粒成長が抑えられ、最終的に時間が十分に経過した後は、徐冷時のほうが α 相析出率は大きくなるためである。未変態 γ 相は最終的にはマルテンサイトあるいはベイナイトに変態する。

次に、急冷と徐冷を組み合わせた冷却時の γ - α 相変態のシミュレーションの例を図6に示す。徐冷後に急冷し再び徐冷する“冷却パターン1”と、徐冷後に急冷する“冷却パターン2”について、それぞれ計算を行った。冷却パターンによって各温度での α 相析出率や組織形状が顕著に異なっているようすが見られる。またこの技術では、析出率のような空間的に平均化された物理量のほかに、組織形状や粒径分布といった内部組織情報も併せて解析できるため、冷却パターンの違いによる組織形成への影響も詳細に調べることができる。

このように、この技術を利用したプロセスシミュレーションは、所望の材質特性を得るための条件探索の支援ツールとして活用できる。

6 あとがき

ここでは、開発したシミュレーション手法を用いた、熱間圧延後の冷却時における鋼材の内部組織形成予測技術について述べた。現在、鉄鋼の実験データを利用した組織形成のモデル化やパラメータの最適化などにより定量性の向上を図っている。

この手法は、鉄鋼をはじめとする様々な金属材料の金属組織に関する諸現象を理解するための有力なツールであり、今後適用対象を拡大していく。

文 献

- (1) 小原一浩. 熱間圧延プラントにおける材質予測と制御. 東芝レビュー. 58, 8, 2003, p.70-71.
- (2) Nishida, Y. et al. "Multi-Phase-Field Simulation in a Low Carbon Steel for Continuous Cooling Processes". Proceedings of Materials Science and Technology (MS&T) 2010. Houston, TX, USA, 2010-10, Minerals, Metals, & Materials Society (TMS) et al. p.1988-1998.
- (3) Kobayashi, R. Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth. Physica D. 63, 1993, p.410-423.
- (4) Tiaden, J. et al. The multiphase-field model with an integrated concept for modelling solute diffusion. Physica D. 115, 1998, p.73-86.
- (5) Steinbach, I. et al. A phase field concept for multiphase systems. Physica D. 94, 1996, p.135-147.



西田 靖孝 NISHIDA Yasutaka, D.Sc.

研究開発センター 有機材料ラボラトリー研究主務, 博士(理学)。計算科学による材料設計に従事。日本物理学会, 日本鉄鋼協会会員。

Organic Materials Lab.



佐野 光彦 SANO Mitsuhiko

東芝三菱電機産業システム(株) 産業第二システム事業部 プロセス制御研究開発センター技術主査。圧延などのプロセス制御技術の研究・開発に従事。日本鉄鋼協会, 日本塑性加工学会会員。Toshiba Mitsubishi-Electric Industrial Systems Corp.



小原 一浩 OHARA Kazuhiro

東芝三菱電機産業システム(株) 産業第二システム事業部 プロセス制御研究開発センター技術主査。圧延などのプロセス制御技術の研究・開発に従事。日本鉄鋼協会, 日本塑性加工学会会員。Toshiba Mitsubishi-Electric Industrial Systems Corp.